



TUGAS AKHIR - TL141584

**ANALISA PENGARUH DOPING NITROGEN  
TERHADAP SIFAT KAPASITIF SUPERKAPASITOR  
BERBAHAN GRAPHENE**

DIAH AYU SAFITRI  
NRP. 2713 100 053

Dosen Pembimbing  
Diah Susanti, S.T., M.T., Ph.D.  
Haniffudin Nurdiansah, S.T., M.T.

Jurusan Teknik Material dan Metalurgi  
Fakultas Teknologi Industri  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember  
Surabaya  
2017

*(halaman ini sengaja dikosongkan)*



**TUGAS AKHIR - TL141584**

**ANALISA PENGARUH DOPING NITROGEN TERHADAP  
SIFAT KAPASITIF SUPERKAPASITOR BERBAHAN  
GRAPHENE**

**DIAH AYU SAFITRI**  
**NRP. 2713 100 053**

Dosen Pembimbing  
Diah Susanti, S.T., M.T., Ph.D.  
Haniffudin Nurdiansah, S.T., M.T.

Jurusan Teknik Material dan Metalurgi  
Fakultas Teknologi Industri  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember  
Surabaya  
2017

*(Halaman ini sengaja dikosongkan)*



**FINAL PROJECT - TL141584**

**THE ANALYSIS OF EFFECT NITROGEN DOPANT ON  
CAPACITIVE PROPERTIES OF GRAPHENE BASED  
SUPERCAPASITOR**

**DIAH AYU SAFITRI  
NRP. 2713 100 053**

**Supervisor**

**Diah Susanti, S.T., M.T., Ph.D.  
Haniffudin Nurdiansah, S.T., M.T.**

**Materials And Metallurgicals Engineering  
Faculty of Industrial Technology  
Sepuluh Nopember Institute of Technology  
Surabaya  
2017**

*(Halaman ini sengaja dikosongkan)*

**ANALISA PENGARUH DOPING NITROGEN  
TERHADAP SIFAT KAPASITIF SUPERKAPASITOR  
BERBAHAN GRAPHENE**

**TUGAS AKHIR**

Diajukan untuk Memenuhi Salah Satu Syarat  
Memperoleh Gelar Sarjana Teknik  
pada  
Bidang Studi Material Inovatif  
Program Studi S-1 Jurusan Teknik Material dan Metalurgi  
Fakultas Teknologi Industri  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Oleh :

**DIAH AYU SAFITRI**

NRP. 2713100053

Disetujui oleh Tim Penguji Tugas Akhir :

Diah Susanti, S.T., M.T., Ph.D.....  (Pembimbing I)

Haniffudin Nurdiansah, S.T., M.T.....  (Pembimbing II)



*(Halaman ini sengaja dikosongkan)*



# **ANALISA PENGARUH DOPING NITROGEN TERHADAP SIFAT KAPASITIF SUPERKAPASITOR BERBAHAN GRAPHENE**

**Nama** : Diah Ayu Safitri  
**NRP** : 2713 100 053  
**Jurusan** : Teknik Material dan Metalurgi  
**Dosen Pembimbing I** : Diah Susanti, S.T., M.T., Ph.D.  
**Dosen Pembimbing II** : Haniffudin Nurdiansah, S.T., M.T.

## **Abstrak**

Kebutuhan manusia akan barang elektronik semakin meningkat, sehingga meningkat pula kebutuhan akan media penyimpanan listrik. Salah satu media penyimpan energy yaitu kapasitor. *Electric Double Layer Capacitor* (EDLC) merupakan superkapasitor yang memiliki waktu hidup yang lebih lama, rapat daya dan kecepatan *charging-discharging* tinggi. Graphene telah banyak dieksplorasi sebagai material untuk EDLC, salah satunya yaitu dengan pendopingan. Penelitian ini bertujuan untuk menganalisa pengaruh doping nitrogen terhadap struktur dan morfologi serta pengaruh doping nitrogen terhadap sifat kapasitif dari elektroda superkapasitor berbahan *Graphene*. Sintesis *graphene* diawali dari grafit yang dioksidasi menjadi grafit oksida dengan metode *Hummer*. Grafit oksida lalu direduksi dengan metode *hydrothermal* menjadi *graphene*. Penelitian ini memvariasikan doping nitrogen dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml, 0.3 ml dan 1 ml. Material yang disintesis ini dikarakterisasi menggunakan XRD, SEM, EDS, Pengujian FPP, dan FTIR. Dari hasil karakterisasi menunjukkan bahwa material yang disintesis adalah *graphene*. Sifat kapasitif Elektroda diukur dengan melakukan uji Cyclic Voltametry (CV) dengan rentang scan rate 5, 10, 50 dan 100 mV/s. Dari hasil penelitian didapatkan doping nitrogen pada *graphene* yang paling optimal adalah dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.3 ml yaitu 5.2%at dengan nilai kapasitansi sebesar 208.47 F/g.

**Kata kunci : *Graphene*, kapasitansi, superkapasitor, doping, nitrogen.**

# **THE ANALYSIS OF EFFECT NITROGEN DOPANT ON CAPACITIVE PROPERTIES OF GRAPHENE BASED SUPERCAPACITOR**

**Name** : Diah Ayu Safitri  
**NRP** : 2713 100 053  
**Department** : Materials and Metallurgical Engineering  
**Advisor** : Diah Susanti, S.T., M.T., Ph.D.  
**Co-Advisor** : Haniffudin Nurdiansah, S.T., M.T.

## **Abstract**

The level of demand for energy is increasing so also increases the demand for electricity storage media. Lots of energy storage media that already exist which is capacitor. Electric Double Layer Capacitor (EDLC) is a supercapacitor that has a longer life, power density and high-speed charging-discharging. Graphene has been widely explored as a material for EDLC, one of which is with dopped. This study aimed to analyze the effect of nitrogen dopant on the structure and morphology as well as the nitrogen dopant influence on the capacitive properties of Graphene-based supercapacitor electrode. Synthesis of graphene begins by oxidized graphite into graphite oxide by Hummer methods. Graphite oxide then reduced by hydrothermal process into graphene. This study vary the dopant nitrogen with variations  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml, 0.3 ml and 1 ml. These synthesized materials have been characterized by XRD, SEM, FTIR, EDS, FTIR, and Conductivity Testing. From the characterized results shows that synthesize material was graphene. The capacitive properties of electrodes are measured by Cyclic voltammetry (CV) test with a scan rate range of 5, 10, 50 and 100 mV / s. From the results, the most optimal addition of nitrogen dopt in Graphene was 5.12% at N with a capacitance value of 208.47 F / g.

**Keywords:** Graphene, capacitance, supercapacitors, dopant, nitrogen

*(Halaman ini sengaja dikosongkan)*

## KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis panjatkan ke hadirat Tuhan Yang Maha Esa yang telah memberikan berkat dan rahmat-Nya, sehingga penulis dapat menyelesaikan Tugas Akhir berjudul **“Analisa Pengaruh Doping Nitrogen Terhadap Sifat Kapasitif Superkapasitor Berbahan Graphene”** yang menjadi salah satu syarat kelulusan mahasiswa di Jurusan Teknik Material dan Metalurgi Fakultas Teknologi Industri Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya.

Penulis juga ingin mengucapkan terima kasih kepada semua pihak yang telah memberi dukungan, dan bimbingan kepada penulis hingga Tugas Akhir ini dapat diselesaikan. Ucapan terima kasih penulis sampaikan kepada :

1. Kedua orang tua dan seluruh keluarga penulis yang senantiasa memberikan dukungan moril, materiil dan doa.
2. Ibu Diah Susanti, S.T.,M.T.,Ph.D dan bapak Haniffudin Nurdiansah, S.T., M.T. sebagai dosen pembimbing Tugas Akhir.
3. Dr. Agung Purniawan, S.T, M.Eng. selaku Ketua Jurusan Teknik Material dan Metalurgi Fakultas Teknologi Industri Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya.
4. Ibu Amaliya Rasyida S.T, M.Sc selaku dosen wali yang membimbing penulis selama menjadi mahasiswa di Jurusan Teknik Material dan Metalurgi.
5. Seluruh dosen Teknik Material dan Metalurgi yang telah memberikan ilmu yang dapat menjadi bekal untuk masa yang akan datang.

Penulis menyadari bahwa masih banyak kekurangan dalam penulisan Tugas Akhir ini. Oleh karena itu, penulis mengharapkan kritik dan saran yang membangun. Akhir kata, semoga tulisan ini dapat bermanfaat bagi semua.

Surabaya, Januari 2017

Penulis

## DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL .....	i
LEMBAR PENGESAHAN .....	ix
ABSTRAK.....	xi
KATA PENGANTAR .....	xv
DAFTAR ISI.....	xvii
DAFTAR GAMBAR .....	xix
DAFTAR TABEL.....	xxi
BAB I PENDAHULUAN	
1.1 Latar Belakang.....	1
1.2 Perumusan Masalah .....	2
1.3 Batasan Masalah .....	2
1.4 Tujuan Penelitian .....	3
1.5 Manfaat Penelitian.....	3
BAB II TINJAUAN PUSTAKA	
2.1 Graphene.....	5
2.2 Karakteristik <i>Graphene</i> .....	5
2.3 Sifat elektrik.....	7
2.4 Sintesis <i>Graphene</i> .....	8
2.5 N- Dopt Graphene.....	12
2.6 Sintesis <i>Graphene</i> .....	13
2.7 Kapasitor .....	14
2.8 EDLC.....	16
2.9 Karakteristik Superkapasitor.....	19
2.10 Penelitian Sebelumnya.....	21
BAB III METODOLOGI PENELITIAN	
3.1 Bahan .....	25
3.2 Alat .....	25
3.3 Metode Penelitian .....	26
3.3.1 Sintesis Grafit Oksida .....	27
3.3.2 Sintesis <i>Graphene</i> dan N- <i>Graphene</i> .....	29
3.3.3 Sintesis Elektroda Ni-graphene .....	32
3.4 Pengujian .....	34
3.4.1 Scanning Electron Microscopy (SEM) .....	34
3.4.2 X-Ray Diffraction (XRD).....	36

3.4.3 Pengujian Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR) .....	37
3.4.4 Cyclic Voltammetry (CV) .....	39
3.4.5 Four Point Probe Test (FPP).....	40
<b>BAB IV ANALISA DATA DAN PEMBAHASAN</b>	
4.1 Pengujian X-Ray Diffraction (XRD).....	43
4.2 Pengujian Scanning Electron Microscope (SEM) .....	48
4.3 Pengujian FTIR.....	55
4.4 Pengujian Four Point Probes (FPP) .....	57
4.5 Pengujian Cyclic Voltammetry (CV) .....	59
<b>BAB V KESIMPULAN DAN SARAN</b>	
5.1 Kesimpulan.....	69
5.2 Saran .....	69
DAFTAR PUSTAKA .....	xxiii
LAMPIRAN.....	xxvii
BIODATA PENULIS .....	xxxvii



## DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1 Pola XRD pada (a) grafit oksida dan (b) <i>graphene</i> . Titik puncak $2\theta$ ( <i>d-spacing</i> ).....	6
Gambar 2.2 Morfologi <i>graphene</i> yang diamati menggunakan SEM .....	6
Gambar 2.3 Bandgap dalam <i>graphene</i> . (A) monolayer <i>graphene</i> , (B) bilayer <i>graphene</i> , dan (C) saat bilayer <i>graphene</i> diberikan medan listrik E menyebabkan bandgap terbuka .....	7
Gambar 2.4 Skema berbagai metode sintesis <i>graphene</i> .....	8
Gambar 2.5 Diagram alir dari sintesis <i>graphene</i> diturunkan dari grafit oksida .....	9
Gambar 2.6 Linearitas pada disperse energy <i>igraphen</i> .....	12
Gambar 2.7. Ikatan untuk Atom Nitrogen pada N-G.....	13
Gambar 2. 8 Plot Ragone untuk storage energy devices.....	15
Gambar 2. 9 Model pembentukan lapisan elektrokimia ganda....	17
Gambar 2. 10 Skema proses charging and discharging pada EDLC .....	18
Gambar 2. 11 Tipe kurva CV dari berbagai jenis superkapasitor.....	20
Gambar 2. 12 Bentuk kurva CV sampel 160o C ultrasonikasi 1,5 jam dalam larutan Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 1 M pada rentang potensial window 0 – (-0,5) V.....	22
Gambar 2. 13 Bentuk kurva CV sampel dalam larutan KOH 6 M pada rentang potensial window -0.1V sampai - 1.1V.....	23
Gambar 3.1 Sintesis grafit oksida .....	27
Gambar 3.2 Proses stirring pada temperatur icebath .....	28
Gambar 3.3 Sintesis <i>graphene</i> dan N- <i>graphene</i> .....	29
Gambar 3.4 Sintesis N- <i>graphene</i> .....	30
Gambar 3.5 Sintesis elektroda Ni- <i>graphene</i> .....	32
Gambar 3.6 Diagram alir pengujian.....	34
Gambar 3.7 a) skema kerja SEM dan b) SEM Inspect S50 .....	35
Gambar 3.8 Instrumen XRD PANalytical, .....	36
Gambar 3.9 Alat Uji FTIR, .....	38
Gambar 3.10 Skema Prinsip FTIR, .....	38

Gambar 3.11 Rangkaian Pengujian FPP .....	41
Gambar 4.1 Perbandingan hasil XRD pada sampel grafit, grafit oksida, graphene .....	43
Gambar 4.2 Perbandingan hasil XRD graphene dan N-graphene .....	46
Gambar 4.3 Perbandingan hasil SEM dengan perbesaran 5000x pada sampel a) grafit, b) grafit oksida, c) graphene .....	48
Gambar 4.4 Hasil SEM nickel foam dengan perbesaran a) 75x, b) 200x .....	49
Gambar 4.5 Hasil SEM Ni-graphene terdeposit graphene perbesaran a) 200x b) 500x .....	50
Gambar 4.6 Hasil SEM dengan perbesaran 10000x graphene dan n-graphene .....	51
Gambar 4.7 Hasil kurva EDX graphene .....	52
Gambar 4.8 Hasil kurva EDX N-graphene 0.1 ml .....	53
Gambar 4.9 Hasil kurva EDX graphene 0.3 ml .....	54
Gambar 4.10 Hasil kurva EDX graphene 1 ml .....	54
Gambar 4.11 Pola FTIR graphene/N-graphene .....	56
Gambar 4.12 Konduktifitas Listrik Graphene .....	58
Gambar 4.13 Perbandingan hasil uji CV grafik I vs E .....	59
Gambar 4.14 Perbandingan hasil uji CV grafik C vs E .....	60
Gambar 4.15 Perbandingan doping atom N vs kapasitansi .....	62
Gambar 4.16 Grafik kapasitansi terhadap scan rate .....	64
Gambar 4.17 Grafik perbandingan nilai spesifik daya dan spesifik energi .....	67

## DAFTAR TABEL

Tabel 2.1 Perbandingan Nilai Kapasitansi Graphene .....	21
Tabel 3.1 Informasi yang terkandung dalam XRD .....	37
Tabel 4.1 Perhitungan d spacing grafit grafi oksida dan graphene.....	45
Tabel 4.2 Perhitungan d spacing grapheme dan N-graphene .....	45
Tabel 4.3 Ukuran Kristal graphene dan N-graphene .....	47
Tabel 4.4 Komposisi Unsur Penyusun Graphene .....	52
Tabel 4.5 Komposisi Unsur Penyusun N Graphene 0.1ml .....	53
Tabel 4.6 Komposisi Unsur Penyusun N Graphene 0.3ml .....	54
Tabel 4.7 Komposisi Unsur Penyusun N Graphene 1ml .....	55
Tabel 4.8 Jenis gugus ikatan pada graphene .....	57
Tabel 4.9 Hasil perhitungan FPP .....	58
Tabel 4.10 Perbandingan komposisi doping dengan C.....	63
Tabel 4.11 Perbandingan kapasitansi terhadap scanrate dan komposisi doping.....	65
Tabel 4.12 Perbandingan Energi dan data terhadap scanrate dan komposisi doping.....	66

*(Halaman ini sengaja dikosongkan)*



## BAB I PENDAHULUAN

### 1.1 Latar Belakang

Kebutuhan manusia akan barang elektronik semakin meningkat, sehingga meningkat pula kebutuhan akan media penyimpan listrik. Banyak sekali media penyimpan energi yang telah ada, salah satunya yaitu kapasitor. Pengembangan kapasitor saat ini telah memasuki era pengembangan superkapasitor. Superkapasitor merupakan terobosan baru di dunia piranti penyimpan energi yang memiliki rapat daya yang besar, kapasitas penyimpanan muatan yang sangat besar, proses pengisian-pengosongan muatan yang cepat dan tahan lama jika dibandingkan dengan kapasitor biasa. Keunggulan tersebut menyebabkan superkapasitor telah digunakan secara luas dalam berbagai bidang seperti bidang teknologi digital, mesin listrik dan peralatan militer dan luar angkasa. Beberapa contoh material yang digunakan sebagai pengisi elektroda adalah karbon aktif, metal oksida, dan lain-lain.

*Electric Double Layer Capacitor* (EDLC) merupakan superkapasitor yang memiliki waktu hidup yang lebih lama, rapat daya dan kecepatan *charging-discharging* tinggi, dibandingkan dengan baterai. EDLC mampu menyimpan energi dengan jumlah yang besar serta memiliki umur pakai yang jauh lebih lama dari pada baterai. (Zhu, *et al.* 2007)

Belakangan ini, *graphene* yang merupakan salah satu material karbon dengan ketebalan satu atom dalam struktur 2 dimensi, telah dikenal sebagai material yang ideal untuk menyimpan energi kimia. Hal ini disebabkan karena keunikan sifatnya antara lain memiliki konduktifitas elektrik yang tinggi, luas permukaan dan kesetimbangan kimia yang bagus (V. Singh, 2011). Sifat selalu berhubungan dengan struktur dari material. Beberapa peneliti telah melakukan modifikasi sifat elektrik dari *graphene* dengan mengontrol strukturnya, termasuk penyiapan carbon sheet dengan



layer yang berbeda dan graphene dengan atau tanpa defek akibat dari metode sintesisnya (L.S. Panchakala, 2009).

Adhitiawan pada tahun 2014 mendapatkan nilai kapasitansi *Graphene*, sebesar 190,01 F/gram. Pada penelitian yang dilakukan Suresh B. Pada tahun 2016, ditemukan bahwa ketika material *Graphene* dan Nitrogen dikombinasikan melalui proses pendopongan, maka akan menaikkan nilai kapasitansi dari superkapasitor. Penelitian Suresh dengan metode via supercritical fluid ini memiliki nilai kapasitansi sebesar 286 F/gram. Melihat nilai kapasitansi yang bagus ketika kedua *Graphene* dan nitrogen dikombinasikan, oleh karena itu perlu adanya penelitian lanjutan tentang kombinasi *Graphene* dengan Nitrogen. Sehingga dalam penelitian ini akan dilakukan doping nitrogen ke dalam *Graphene* untuk meningkatkan sifat kapasitif dan nilai kapasitansinya sebagai superkapasitor.

## 1.2 Perumusan Masalah

Masalah yang terdapat dalam penelitian ini yaitu:

1. Bagaimana pengaruh dopant nitrogen terhadap struktur dan morfologi *Graphene* sebagai elektroda superkapasitor?
2. Bagaimana pengaruh dopant nitrogen terhadap sifat kapasitif dari elektroda superkapasitor berbahan *Graphene*?

## 1.3 Batasan Masalah

Agar diperoleh hasil akhir yang baik dan sesuai dengan yang diinginkan serta tidak menyimpang dari permasalahan yang ditinjau, maka batasan masalah pada penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Ukuran serbuk grafit dianggap sama.
2. Kecepatan stirring dianggap konstan.
3. Tekanan dari autoclave dianggap konstan.
4. Temperatur dan tekanan udara sekitar dianggap konstan.



#### **1.4 Tujuan Penelitian**

Tujuan dari penelitian ini yaitu:

1. Menganalisa pengaruh dopant nitrogen terhadap struktur dan morfologi *Graphene* sebagai elektroda superkapasitor.
2. Menganalisa pengaruh dopant nitrogen terhadap sifat kapasitif dari elektroda superkapasitor berbahan *Graphene*.

#### **1.5 Manfaat Penelitian**

Penelitian ini bertujuan untuk menghasilkan *Graphene* dengan dopping nitrogen yang mempunyai karakteristik tertentu sehingga bisa digunakan untuk aplikasi elektroda, serta bisa digunakan untuk rujukan terhadap penelitian-penelitian selanjutnya.



*(halaman ini sengaja dikosongkan)*





## BAB II TINJAUAN PUSTAKA

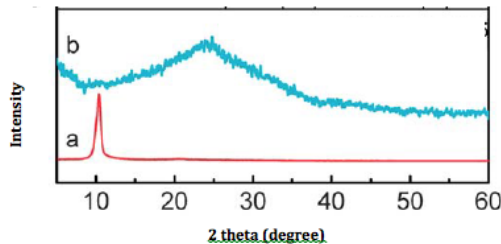
### 2.1. *Graphene*

*Graphene* adalah susunan atom karbon dalam kerangka heksagonal serupa sarang lebah yang membentuk satu lembaran setipis satu atom. Penemuan *graphene* secara eksperimental terjadi tahun 2004 (Novoselov, 2004). *Graphene* merupakan satu lapis (tebal  $\sim 0.34$  nm) atom karbon yang mengalami hibridisasi  $sp^2$  (berikatan kovalen dengan 3 atom lainnya) dengan susunan kisi segi enam planar (*honeycomb lattice* 2D) membentuk struktur yang unik, baik sifat mekanik maupun kelistrikan (Basu, dkk, 2012).

Struktur *graphene* yang berbentuk heksagonal, menyebabkan *graphene* memiliki sifat yang baik antara lain mobilitas muatan yang tinggi ( $230,000 \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ ) dengan 2.3% kemampuan penyerapan cahaya, konduktivitas termal yang tinggi ( $3000 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ ), kekuatan tarik tertinggi (130 GPa), dan luas permukaan terbesar ( $2600 \text{ m}^2/\text{g}$ ). (Singh, 2011)

### 2.2 Karakterisasi *Graphene*

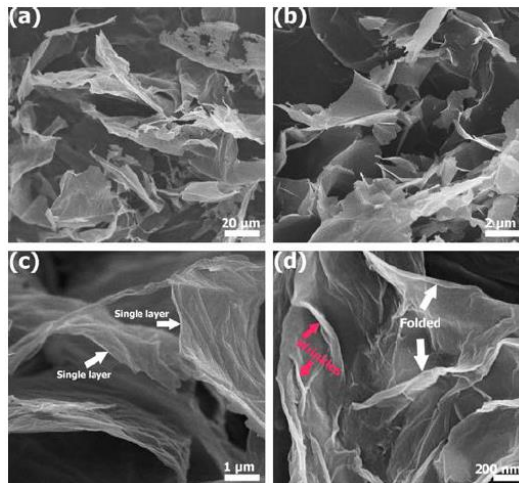
Pengujian XRD dari *graphene* menunjukkan terjadinya perubahan struktur dari grafit oksida menjadi *graphene*. Pada grafit oksida memiliki intensitas yang relatif tinggi dengan titik puncak pada posisi  $2\theta \sim 9-10^\circ$  dengan d-spacing  $\sim 8.60 \text{ \AA}$  kemudian bergeser lagi ke posisi  $\sim 23-24^\circ$  dengan d-spacing  $\sim 3.62 \text{ \AA}$  pada *graphene* yang mengindikasikan terjadinya proses reduksi, seperti ditunjukkan **Gambar 2.1**.



**Gambar 2.1** Pola XRD pada (a) grafit oksida dan (b) *graphene*.

Titik puncak  $2\theta$  ( $d$ -spacing) (Zhang, et al. 2009).

Sedangkan pada pengujian SEM (Scanning Electron Microscope), struktur *graphene* menunjukkan morfologi lembaran transparan dimana dapat diketahui bentuk single layer *graphene*, wrinkle, maupun folding yang terjadi pada permukaan *graphene*.

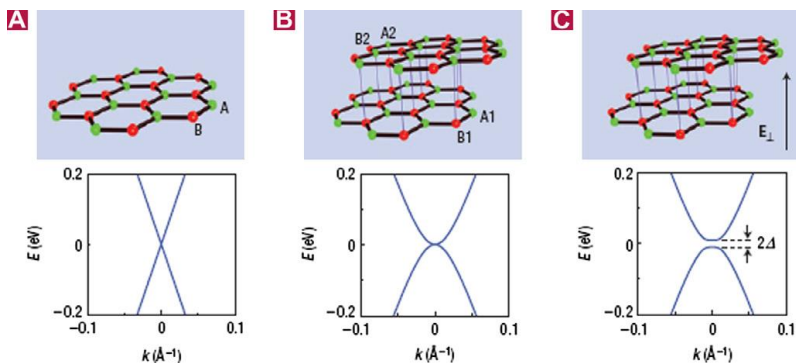


**Gambar 2.2** Morfologi *graphene* yang diamati menggunakan SEM (Khair, et al. 2013).



### 2.3 Sifat Elektrik

Graphene murni, sebuah kisi karbon heksagonal dua dimensi adalah konduktor dengan *zero gap*. Hibridisasi  $sp^2$  atom karbon tersusun dalam bentuk heksagonal dalam lapisan dua dimensi. Satu cincin heksagonal terdiri dari tiga ikatan *in-plane sigma* orbital  $p_z$  yang tegak lurus terhadap bidang heksagonal. Semakin bertambahnya lapisan graphene maka nilai bandgap semakin besar seperti yang ditunjukkan pada **Gambar 2.3**.



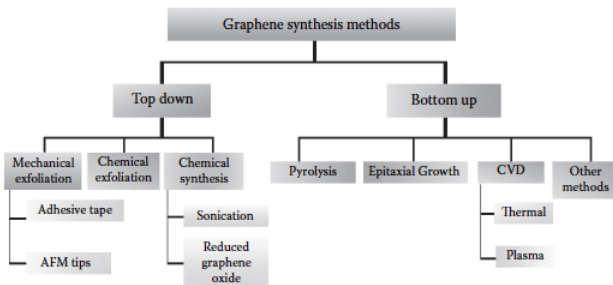
**Gambar 2.3** Bandgap dalam graphene. (A) monolayer graphene, (B) bilayer graphene, dan (C) saat bilayer graphene diberikan medan listrik  $E$  menyebabkan bandgap terbuka (Singh, et al. 2011).

Sebagai konduktor dengan *zero bandgap*, graphene menunjukkan sebuah efek medan listrik ambipolar dan pembawa muatan yang dapat diatur terus-menerus antara elektron dan *holes* dalam konsentrasi setinggi  $10^{13} \text{ cm}^{-2}$ , dengan mobilitas elektron di temperatur ruang hingga  $15.000 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ . Selain itu, mobilitas yang diamati tidak terlalu bergantung pada temperatur, sehingga mobilitas *graphene* yang sangat tinggi dapat diperoleh di temperatur ruang. Dengan mengurangi pengotor, mobilitas electron dapat mencapai  $200.000 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  untuk *suspended graphene*. (Zhou, et al. 2009)



## 2.4. Sintesis *Graphene*

Berbagai metode telah dikembangkan untuk sintesis *graphene* dalam hal jumlah lapisan, luas, dan bentuknya. Namun, pengelupasan secara mekanik (mechanical exfoliation), pengelupasan secara kimia (chemical exfoliation), sintesis secara kimia, dan chemical vapor deposition (CVD) adalah metode yang paling sering digunakan saat ini. Beberapa metode baru yang sudah ditemukan seperti *unzipping nanotube* dan *microwave synthesis* masih perlu lebih dikembangkan. Pada dasarnya metode sintesis *graphene* terbagi dua yaitu pembelahan grafit menjadi lapisan-lapisan *graphene* (*top down*) dan penumbuhan *graphene* secara langsung dari atom-atom karbon (*bottom up*). Berbagai metode sintesis *graphene* dapat diilustrasikan pada **Gambar 2.4** (Choi, et al. 2012).



**Gambar 2.4** Skema berbagai metode sintesis *graphene* (Choi, et al. 2012)

### 2.4.1. Sintesa Secara Kimiawi : *Reduced Graphene Oxide*

*Graphene* dapat disintesis dengan menggunakan metode Hummer, yang melibatkan proses oksidasi dari grafit menjadi grafit oksida, kemudian dilanjutkan dengan proses ultrasonikasi untuk mengubah grafit oksida menjadi *graphene* oksida, dan terakhir proses reduksi untuk mereduksi *graphene* oksida menjadi *graphene*. Skema sintesis *graphene* diilustrasikan pada **Gambar 2.5**.



Kelebihan mensintesis *graphene* dengan model ini, adalah *graphene* yang diperoleh bisa dalam jumlah yang banyak. Selain itu, peralatan yang digunakan tergolong mudah dan tidak terlalu susah dalam aplikasinya. Sedangkan kekurangan dari metode ini, adalah *graphene* yang dihasilkan cenderung mempunyai tingkat *defect* atau cacat yang tinggi, karena permukaan *graphene* berkali-kali bersentuhan langsung dengan senyawa kimia baik itu oksidator maupun reduktor, sehingga terdapat banyak *impurities* dan struktur yang tidak sempurna pada permukaan *graphene*. Selain itu, konduktivitas material yang dihasilkan juga sangat rendah.



**Gambar 2.5** Diagram alir dari sintesis *graphene* diturunkan dari grafit oksida (Choi, et al. 2012).

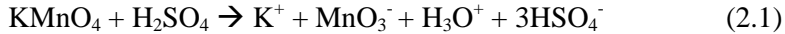
#### 2.4.1. Proses Oksidasi (Metode Hummers)

Proses oksidasi grafit menjadi grafit oksida dilakukan dengan menggunakan metode Hummer. Metode Hummer menggunakan larutan  $\text{NaNO}_3$ ,  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{KMnO}_4$ , dan  $\text{H}_2\text{O}_2$ . Produk oksidasi kemudian dimurnikan dengan pencucian 10%  $\text{HCl}$ , dan dilanjutkan dengan pencucian aquades (Tien, et al. 2012).

Permanganate merupakan oksidan (*dihydroxylations*), berupa  $\text{Mn}_2\text{O}_7$ . Terbentuk minyak berwarna merah tua dari hasil reaksi  $\text{KMnO}_4$  dengan  $\text{H}_2\text{SO}_4$ . Aktivasi Ion  $\text{MnO}_4^-$  yang sangat reaktif hanya terjadi pada kondisi asam sesuai persamaan 2.9 dan 2.10. Transformasi  $\text{MnO}_4^-$  menjadi bentuk yang lebih reaktif  $\text{Mn}_2\text{O}_7$  akan sangat membantu mengoksidasi grafit, tetapi bentuk bimetal dari permanganate oksida diketahui dapat meledak jika mengalami pemanasan melebihi  $55^\circ\text{C}$ . Tromel dan Russ telah membuktikan kemampuan  $\text{Mn}_2\text{O}_7$  dalam memilih oksida berikatan rangkap alifatik lebih ikatan rangkap aromatik. Hal ini



merupakan gambaran penting struktur grafit dan proses reaksi yang terjadi selama oksidasi (Dreyer, et al. 2009).



Grafit dicampurkan dengan  $\text{H}_2\text{SO}_4$  pada temperature 0 °C. Kemudian distirring dengan penambahan  $\text{KMnO}_4$  secara bertahap. Proses stirring harus dijaga pada temperature dibawah 35 °C selama 24 jam. Proses berikutnya adalah penambahan aquades pada campuran. Karena penambahan aquades pada  $\text{H}_2\text{SO}_4$  konsentrasi medium melepaskan sejumlah panas, maka temperaturnya harus dikontrol kurang dari 100 °C. 30%  $\text{H}_2\text{O}_2$  harus ditambahkan dalam campuran untuk mereduksi sisa  $\text{KMnO}_4$ . Ketika hidrogen peroksida ditambahkan maka terbentuk gelembung-gelembung dan warna larutan berubah menjadi kuning cerah. Selanjutnya untuk menghilangkan ion-ion dari aquades maka campuran harus dicuci dengan mengguakan HCl 5%. Produk campuran kemudian dikeringkan pada temperature 60 °C selama 24 jam (Wu, et al. 2015).

Namun, produk Hummer biasanya adalah bagian intinya berupa grafit sedangkan bagian luarnya adalah oksida grafit (GO). Untuk mengatasi hal ini, maka perlu dilakukan perlakuan sebelum melakukan proses Hummer untuk meningkatkan derajat oksidasi. Metode pra-oksidasi ini pertama kali diperkenalkan oleh Kovtukhova (1999), Grafit dicampurkan dengan  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8$  dan  $\text{P}_2\text{O}_5$  dijaga pada temperature 80 °C selama 6 jam. Hasil campuran kemudian dicuci dengan air dan dikeringkan. Selain dengan Pra-oksidasi, untuk menghasilkan produk GO yang sempurna metode Hummer juga dapat dimodifikasi dengan menambah jumlah potassium permanganat.

#### 2.4.1.2. Ultrasonikasi

Ultrasonikasi / sonikasi merupakan langkah penting yang menyediakan energi untuk mengelupaskan lembaran *graphene*



dari grafit. Cara alternatif untuk mengelupaskan lembaran *graphene* adalah dengan memanaskan larutan yang mengandung grafit, tetapi cara ini tidak efektif dibandingkan dengan proses ultrasonikasi. Pada umumnya terdapat dua cara untuk mengaplikasikan ultrasonikasi pada larutan yang mengandung grafit yaitu *sonication bath* dan *tip sonication*. Pada *sonication bath*, daya ultrasonikasi yang ditransfer menuju tabung yang diisi pelarut dan grafit akan dipengaruhi oleh berapa banyak air yang ditempatkan pada wadahnya, apakah tabung menyentuh dasar wadah, dan lokasi tabung dalam wadah. Untuk hasil yang lebih baik, disarankan untuk menjaga tiga parameter dengan konsisten. (Warner, et al. 2006)

#### 2.4.2 Metode Hydrothermal

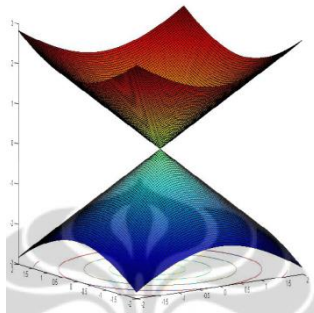
Prinsip dasar dari proses *hydrothermal* adalah menghasilkan reaksi heterogen dalam media pelarut cair dengan kondisi temperatur dan tekanan tinggi untuk melarutkan dan merekritisasi material yang tidak bisa berlangsung pada kondisi normal. Untuk melakukan proses *hydrothermal*, diperlukan *autoclave* sebagai wadah sampel. Dalam penelitiannya, Zhou (2009) menyatakan bahwa dengan metode *hydrothermal dehydration* yang mudah, bersih, dan terkontrol dapat mengubah *Graphene* oksida menjadi larutan *Graphene* yang stabil. *Supercritical water* (SC) yang digunakan dalam proses *hydrothermal* dapat menjadi agen pereduksi yang baik dan menjadi alternatif pelarut organik dalam *green* kimia. Dalam proses *hydrothermal*, SC mampu mereduksi gugus fungsi oksigen dari GO dan memperbaiki struktur aromatiknya.

Keunggulan proses *hydrothermal* dikemukakan Zhou (2009) yaitu proses sintesis mudah, pengontrolan bentuk dan ukuran serbuk, temperatur operasi yang rendah, homogenisasi tinggi, dan biaya operasional rendah.



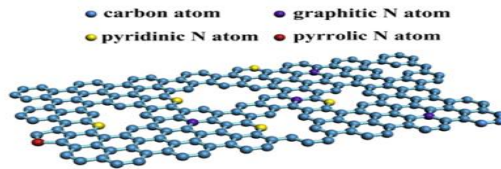
### 2.5 N-doped *Graphene*

Doping adalah metode yang paling tepat yang dapat digunakan sebagai pengontrol sifat semikonduktor dalam komunitas semikonduktor konvensional. Graphene yang didoping artinya ada sebagian dari atom karbon pada suatu sel satuan yang digantikan oleh atom lain. Atom - atom pengotor diasumsikan akan mensubstitusi atom karbon, sehingga atom-atom pengotor harus memiliki jari-jari atom yang hampir sama dengan jari-jari atom karbon. berdasarkan sistem periodik unsur-unsur, karbon berada pada golongan IV A dan memiliki nomor atom 6, sehingga memiliki 6 proton. Nitrogen berasal dari golongan V A dan bernomor atom 7, sehingga memiliki 7 proton (Brindan, 2015). Atom N adalah kandidat alami untuk doping pada graphene karena ukuran atomnya yang sama seperti atom C dan bisa menjadi donor elektron untuk substitusi N-doping. Apabila karbon didop dengan nitrogen, maka interaksi antara elektron dengan ion menjadi negatif relatif terhadap interaksi coulomb antara elektron dengan ion sebelum didop, sehingga nilai potensial penghambur (V) menjadi negatif.



**Gambar 2.6** Linearitas pada dispersi energi graphen (Brindan, 2015).





**Gambar 2.7.** Ikatan untuk Atom Nitrogen pada N-G (Yu, 2012).

Sebagian besar ada tiga jenis ikatan yang berbeda untuk mengikat atom N: *graphitic* (substitusi), *pyridinic*, atau *N pyrrolic* (Yu, 2011). Secara khusus, ikatan pyridinic N dengan dua atom C di tepi atau cacat dari graphene dan menyumbangkan satu p elektron untuk sistem  $\pi$ . Pyrrolic N mengacu atom N yang berkontribusi dua elektron p ke sistem  $\pi$ , meskipun tidak perlu iaktan ke dalam cincin beranggota lima, seperti di pyrrole. Kuarter N mengacu pada atom N yang pengganti atom C dalam cincin heksagonal. Di antara jenis nitrogen ini, pyridinic N dan kuaterner N  $sp^2$  hibridisasi dan pyrrolic N adalah  $sp^3$  hibridisasi.

Ada beberapa proses dalam sintesis *graphene* N-doping. Diantaranya dengan Metode *Arc discharge*, digunakan untuk membuat N-doped graphene dengan memberikan arus tinggi diantara elektroda grafit dan  $H_2 + NH_3$ , metode *chemical vapor deposition* (CVD) untuk menyintesis *N-doped graphene*, menggunakan film Cu tebal 25-nm pada substrat Si sebagai katalis dalam atmosfer  $H_2$  (20% di Ar) dan  $CH_4 + NH_3$  sebagai sumber C dan N. Pada pengujian *X-ray spektroskopi fotoelektron* (XPS) dapat diketahui bahwa sebagian besar atom C dalam N-doped graphene tersusun dalam kisi sarang lebah terkonjugasi. Meskipun *N-doped graphene* berhasil disintesis dengan metode CVD, mobilitasnya kurang dari  $500 \text{ cm}^2/\text{V.s}$ , yang lebih rendah dibandingkan dengan teknik *exfoliated graphene*,  $5000 \text{ cm}^2/\text{V.s}$ , dan intrinsik *graphene*, sebesar  $200.000 \text{ cm}^2/\text{V.s}$ . Pengukuran temperatur pada aliran listrik menunjukkan tahanan dari graphene N-doped menurun lebih dari 80 kali lipat ketika suhu meningkat



dari suhu cair nitrogen menjadi 300 K, hal ini menunjukkan properti semikonduktor dari graphene N-doped. (Beidou G.2011)

## 2.6 Kapasitor

Kapasitor merupakan perangkat elektronik yang dapat menyimpan dan memberikan energi. Kapasitor terbagi dalam dua grup dasar: kapasitor elektrolitik dan kapasitor elektrokimia. Kapasitor elektrolitik memiliki konstruksi 2 keping logam sejajar yang disisipi material dielektrik diantara keduanya. Material seperti lapisan plastik dan keramik digunakan sebagai dielektrik, dengan berbagai jenis logam yang digunakan sebagai elektroda.

Kapasitor elektrokimia menggunakan elektrolit yang dapat memunculkan lapisan dielektrik dan juga membentuk kutub katoda. Logam foil atau serbuk, seperti halnya aluminium dan tantalum, digunakan untuk membentuk kutub Anoda (KEMET Co. Ltd. 2010).

Kapasitansi sebanding dengan luas permukaan plat elektroda dan permitivitas dielektrik antar dua plat serta berbanding terbalik dengan jarak antar dua plat. Kapasitansi dalam kapasitor keping sejajar dapat ditulis sebagai berikut:

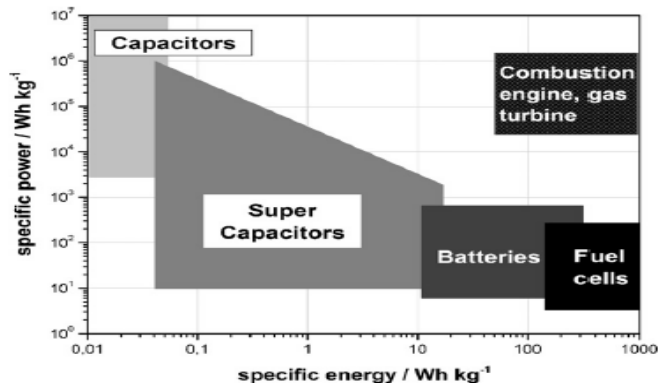
$$C=QV=I.tV=\epsilon A/ ;\gg d^2 \quad (2.3)$$

C adalah kapasitansi (Farad), Q adalah muatan (Coulomb), V adalah potensial (Volt), i adalah arus (Ampere), t adalah waktu (detik),  $\epsilon$  adalah permitivitas dielektrik ( $\text{Fm}^{-1}$ ), A adalah luas permukaan konduktor atau plat ( $\text{m}^2$ ), dan d adalah ketebalan dielektrik atau jarak antara kedua plat (m). Kapasitor elektrokimia adalah kapasitor jenis khusus yang bekerja berdasarkan *charging* (pemasukan muatan) dan *discharging* (pelepasan muatan) dari *interface* material-material yang mempunyai luas spesifik yang tinggi seperti material karbon yang berpori atau beberapa oksida logam yang berpori. Kapasitansinya 10000 kali lebih tinggi daripada kapasitansi kapasitor elektrolitik dengan dimensi yang sama. Oleh karenanya, kapasitor



elektrokimia sering juga disebut “*superkapasitor*” atau “*ultracapasitor*”. (Conway 1999).

Kapasitor elektrokimia (ECs) dibuat untuk menjembatani perbedaan kinerja kritis diantara kapasitor konvensional yang mempunyai densitas daya yang tinggi dengan baterai / sel bahan bakar yang mempunyai densitas energi yang tinggi, karena karakteristik uniknya yang mencakup wilayah yang luas pada densitas daya dan densitas energi. Kapasitor elektrokimia merupakan tipe perangkat yang berorientasi pada daya dengan efisiensi densitas energi yang tinggi dan siklus hidup yang lama.



**Gambar 2. 8** Plot Ragone untuk storage energy devices  
(Warner, et al. 2006)

Kapasitor elektrokimia telah mampu menarik banyak perhatian karena densitas dayanya yang lebih tinggi dan siklus hidupnya yang lebih panjang jika dibandingkan dengan baterai, dan densitas energinya yang lebih tinggi jika dibandingkan dengan kapasitor konvensional (elektrolitik). Gambar Plot Ragone menunjukkan posisi berbagai alat penyimpanan energi ditinjau dari energi spesifik dan daya spesifiknya seperti pada **Gambar 2.8**. Baterai seperti pada Li-ion baterai dapat mencapai energy density hingga 180 Wh/kg dengan power density yang rendah sampai 1 kW/kg.

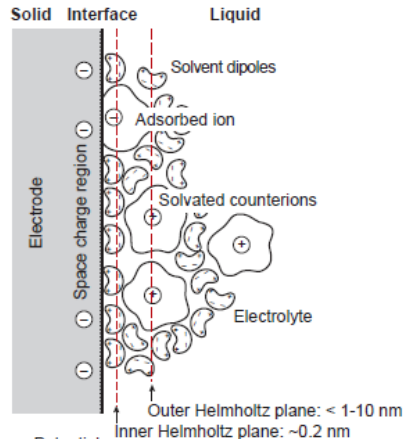


Superkapasitor dapat memberikan power density yang tinggi (10 kW/kg) dengan energi tersimpan yang lebih rendah daripada baterai (5 Wh/kg) (Conway 1999). Karakteristik ini terjadi karena perbedaan mekanisme penyimpanan energi pada masing-masing peralatan. Suatu *device* dikatakan sebagai superkapasitor bila memiliki minimum energy density sebesar 0.027 Wh/kg dengan minimum power density 10 W/kg (Winter et al. 2004).

## 2.6 EDLC (*Electric Double Layer Capacitor*)

Kapasitor elektrokimia secara umum dikategorikan kedalam tiga jenis berdasarkan mekanisme penyimpanan energinya : EDLC, *Pseudocapacitor*, dan *hybrid capacitor*. Masing-masing secara berurutan terjadi mekanisme non-Faradaik, Faradaik, atau kombinasi keduanya. Mekanisme Faradaik melibatkan transfer muatan antara elektroda dan elektrolit melalui reaksi oksidasi-reduksi. Sebaliknya, mekanisme non-Faradaik tidak melibatkan proses pemutusan ikatan kimia melainkan melalui distribusi muatan pada permukaan elektroda.

Penyimpanan muatan pada EDLC didasarkan pada pemanfaatan pemisahan muatan secara fisik antara ion-ion pada satu sisi elektroda dan muatan permukaan pada *interface solid-liquid* pada sisi lainnya, atau yang dikenal sebagai lapisan elektrokimia ganda. Lapisan ganda dapat dibentuk dengan memberikan tegangan pada elektroda yang terendam dalam larutan elektrolit. Tegangan yang diberikan akan menginduksi pemisahan muatan dan mendorong ion-ion dalam larutan elektrolit berdifusi melewati pemisah menuju elektroda. Di sekitar elektroda ion-ion tersebut akan mengalami penyusunan ulang akibat tertarik oleh muatan yang berbeda pada sisi solid elektroda. Oleh karena itu terbentuklah lapisan ganda yang terdiri atas dua lapis muatan paralel ion-ion pada *interface* elektroda-elektrolit dan ion-ion dengan muatan berlawanan pada sisi elektroda solid. **Gambar 2.9** menunjukkan contoh pembentukan lapisan ganda pada permukaan elektroda.



**Gambar 2. 9** Model pembentukan lapisan elektrokimia ganda (Kurzweil, et al. 2009)

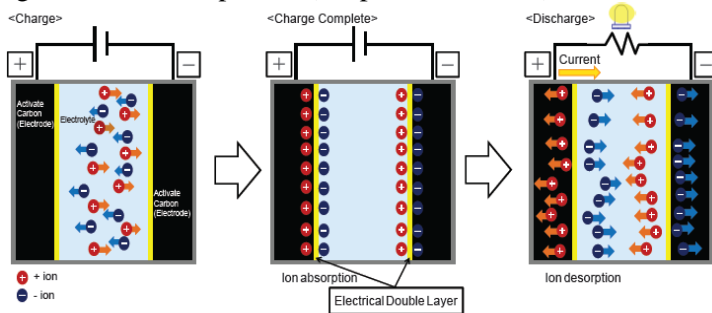
Pemberian tegangan pada elektroda yang terendam dalam elektrolit juga menimbulkan mekanisme absorpsi dan desorpsi ion pada kedua layer elektroda karbon, yang berperan dalam pengisian dan pengosongan EDLC. Saat tegangan diberikan pada kedua elektroda yang berhadapan maka ion akan tertarik ke permukaan kedua elektroda dan terjadilah proses pengisian atau *charging*. Sebaliknya, ion akan bergerak menjauh saat EDLC digunakan atau *discharging* (Murata Manufacturing Co Ltd, 2013). Proses *charging and discharging* dari EDLC dapat dilihat pada **Gambar 2.10**.

Seperti telah dijelaskan sebelumnya, mekanisme kerja EDLC merupakan proses non-Faradaik yang tidak melibatkan transfer muatan antara elektroda dan elektrolit, sehingga tidak terjadi perubahan komposisi kimia. Untuk alasan inilah penyimpanan muatan EDLC memiliki tingkat reversibel dan stabilitas siklus yang tinggi.

EDLC biasanya mampu beroperasi dengan karakteristik kinerja yang stabil untuk siklus *charge-discharge* tinggi mencapai



$10^6$  cycles. Sebaliknya baterai elektrokimia hanya mampu bekerja dengan siklus mencapai  $10^3$  (Halper, et al., 2006).



**Gambar 2. 10** Skema proses charging and discharging pada EDLC (Murata co Ltd, 2013)

Kinerja EDLC sangat bergantung pada jenis material elektroda (karbon) dan larutan elektrolitnya. EDLC menggunakan elektroda berbahan karbon karena mempunyai luas permukaan spesifik yang tinggi kira-kira  $10^3$  hingga  $2 \times 10^3 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ . Sedangkan larutan elektrolit berperan sebagai pensuplai ion melalui proses disosiasi. Disosiasi sendiri merupakan peristiwa terurainya suatu zat menjadi beberapa zat yang lebih sederhana. Pada EDLC misalnya, sebuah larutan elektrolit AB terdisosiasi menjadi komponennya  $A^-$  dan  $B^+$ . Hal tersebut dinamakan disosiasi elektrolit atau ionisasi dan reaksi ini juga merupakan reaksi reversibel atau berjalan bolak-balik karena ion-ion  $A^-$  dan  $B^+$  juga bisa kembali membentuk elektrolit AB seperti yang terlihat pada persamaan 2.4. Melalui proses seperti inilah ion-ion bermuatan listrik dapat dimanfaatkan pada sistem kerja EDLC.



Karbon aktif digunakan sebagai elektroda, karena (1) biaya rendah, (2) luas permukaan yang tinggi, (3) ketersediaan, dan (4) teknologi produksi mudah. Karbon aktif yang digunakan dalam bentuk padatan sedangkan larutan elektrolitnya dalam bentuk cair. Ketika bahan-bahan ini melakukan kontak antara satu dengan yang lainnya, maka kutub positif dan negatif



didistribusikan relatif terhadap satu dan yang lainnya dengan jarak yang sangat dekat. Fenomena seperti ini dikenal dengan sebutan lapisan elektrokimia ganda.

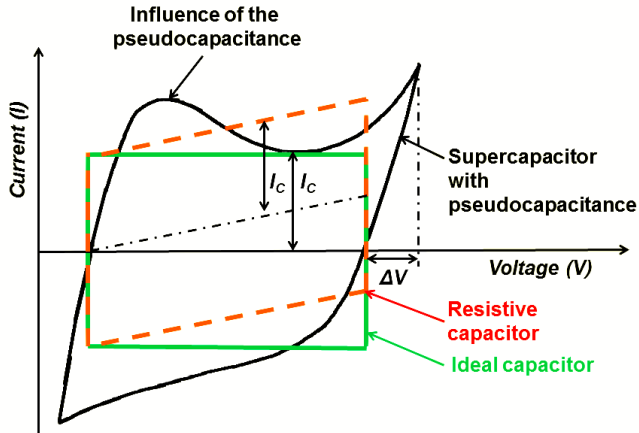
Berbagai jenis EDLC telah beredar dipasaran, misalnya Rubycon, yang mempunyai kapasitansi mulai dari 1 – 30 F, Nesscap yang mempunyai kapasitansi 3-50 F, Murata yang mempunyai kapasitansi 0.47 F, sampai Dynacap yang mempunyai kapasitansi hingga 300 F.

Saat ini EDLC telah diaplikasikan pada berbagai bidang, termasuk pada peralatan *LED flash*, *audio circuit* dan *power amplifier*. Selain itu juga diaplikasikan dalam meteran listrik, Solid State Disk (SSD) atau harddisk portable, Uninterrupted Power Supply (UPS).

## **2.7 Karakteristik Superkapasitor**

Superkapasitor adalah piranti elektrokimia yang dapat menyimpan energi dan melepaskannya kembali dengan kekuatan daya yang tinggi dan densitas arus yang tinggi selama selang waktu yang pendek. Sehingga, kapasitor sangat diunggulkan sebagai pengganti untuk baterai dan fuel cell pada berbagai variasi aplikasi, misalnya mobil dan piranti elektronik portabel. Prinsip penyimpanan energi pada superkapasitor adalah akumulasi dari muatan elektrostatik pada elektroda- interface elektrolit atau transfer dari muatan ke dalam lapisan molekul yang mengalami reaksi redoks pada bagian permukaan dari elektroda (pseudokapasitor).

Berbagai tipe superkapasitor dapat dilihat dari jenis kurva *cyclic voltammogram (CV)* nya. **Gambar 2.11** menunjukkan berbagai tipe kurva CV dari berbagai jenis superkapasitor. Dari Gambar tersebut dapat dilihat bahwa superkapasitor mempunyai beberapa tipe. Yang pertama adalah superkapasitor ideal (warna hijau). Superkapasitor ideal menunjukkan pola *charging* *discharging* yang sama, sehingga mempunyai bentuk yang *rectangular*, atau persegi, yang menandakan bahwa *charging* *discharging* berlangsung dalam waktu yang sama.



**Gambar 2. 11** Tipe kurva CV dari berbagai jenis superkapasitor

Yang kedua adalah jenis kapasitor resistif (warna merah). Kapasitor jenis ini ditandai oleh bentuk kurva CV yang *rectangular*, namun miring keatas, yang menandakan adanya peningkatan *current density* seiring dengan pertambahan nilai voltase. Yang terakhir adalah jenis *pseudocapacitor* (warna hitam). Ciri khas dari jenis kapasitor ini adalah adanya *hump* (gundukan), yang menandakan terjadinya reaksi, baik oksidasi maupun reduksi. *Pseudocapacitor* biasanya mempunyai kapasitansi yang lebih tinggi, karena adanya efek reaksi redoks yang terjadi.

Superkapasitor EDLC sangat tergantung pada luas permukaan aktif dari material elektroda. Oleh karena itu, *Graphene* yang mempunyai luas permukaan aktif teoritik mencapai  $2500 \text{ m}^2/\text{g}$ , yang juga mempunyai sifat konduktivitas yang baik, mikrostruktur yang dapat dikontrol, dan stabilitas termal dan mekanik yang luar biasa, sangat menjanjikan sebagai elektroda EDLC. Dengan menggunakan elektroda dari grafit oksida yang telah direduksi, Stoller (2009), menemukan nilai





kapasitansi mencapai 135 F/g dan 99 F/g pada larutan elektrolit organik.

## 2.8 Penelitian-penelitian yang telah dilakukan

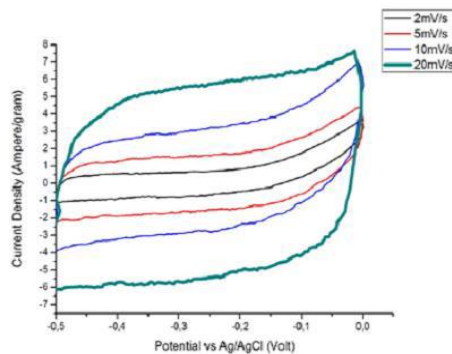
Beberapa penelitian yang telah dilakukan dan nilai kapasitansi dari superkapasitor *Graphene* dengan beberapa jenis metode yang digunakan dalam pembuatan *Graphene* dan aplikasinya dalam superkapasitor

**Tabel 2. 2** Perbandingan nilai kapasitansi dari superkapasitor *Graphene*

Material	Perlakuan	Kapasitansi Spesifik (F/g)	Peneliti
<i>Graphene</i>	Deposit pada nickel foam	125,87	Hanung dkk (2015)
<i>Graphene</i>	Ultrasonikasi dan hidrotermal	190.01	Adhtiawan, dkk (2014)
<i>Graphene</i>	Massa Zink	90.623	Suwandana, dkk (2014)
<i>Graphene</i>	Ultrasonikasi dan hidrotermal	491.36	Nurdiansah H, dkk (2014)
<i>Nitrogen doped Graphene</i> dari Sutra Kepompong	Temperatur karbonisasi dan % Nitrogen	348	Vikrant Sahu, dkk (2015)
<i>Nitrogen doped Graphene</i>	Proses sumber doping nitrogen	286	S. Suresh Balaji, dkk (2016)
<i>Nitrogen doped Graphene</i>	Variasi <i>Graphene</i> dengan doping nitrogen	243.5	Youning Gong, dkk (2015)



Pada tahun 2014, Nurdiansah dkk (2014) melakukan sintesis *Graphene* dengan metode Hummer yang diikuti dengan proses reduksi oleh serbuk Zn dan proses hidrotermal. Penelitian tersebut bertujuan untuk mengetahui pengaruh waktu ultrasonifikasi dan temperatur hidrotermal terhadap nilai kapasitansi elektroda EDLC. Variasi waktu ultrasonifikasi yang digunakan adalah 90 menit, 120 menit, dan 150 menit, sementara temperatur hidrotermalnya 160° C, 180° C, dan 200° C. Dari uji CV didapatkan nilai kapasitansi tertinggi pada variasi temperatur 160° C dan waktu ultrasonifikasi 1,5 jam dengan nilai kapasitansi 491,36 F/g seperti yang terlihat pada **Gambar 2.12**



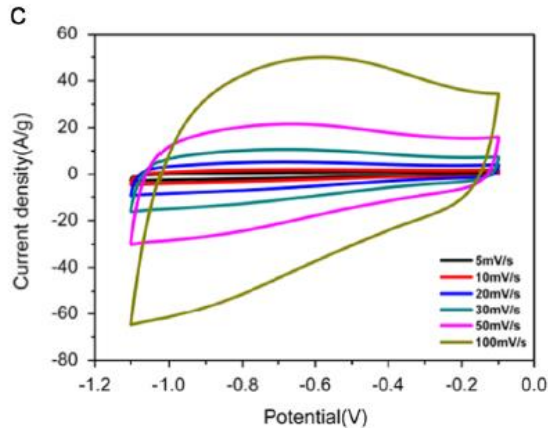
**Gambar 2. 12** Bentuk kurva CV sampel 160° C ultrasonikasi 1,5 jam dalam larutan Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 1 M pada rentang potensial window 0 – (-0,5) V. (Nurdiansah, 2014)

Dengan nilai kapasitansi yang cukup besar dari penelitian ini dapat diketahui bahwa *Graphene* sangat potensial untuk menjadi Electric Double Layer Capacitor dan juga diketahui bahwa penurunan nilai kapasitansi sebanding dengan kenaikan temperature hydrothermal dan waktu ultrasonikasi.

Kemudian pada tahun 2015, Youning Gong dkk melakukan *Nitrogen doped Graphene* dengan pembentukan serbuk *Graphene* oxide yang diikuti penambahan ammonium hydroxide sebagai dopant nitrogen dan direduksi dengan metode



hydrothermal. Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui kinerja dari *Nitrogen doped Graphene* sebagai superkapasitor. Dari uji CV didapatkan nilai kapasitansi 243.5 F/g jika menggunakan elektrolit *aqueous* seperti yang terlihat pada **Gambar 2.13**



**Gambar 2. 13** Bentuk kurva CV sampel dalam larutan KOH 6 M pada rentang potensial window -0.1V sampai - 1.1V (Gong, et al. 2015)



*(halaman ini sengaja dikosongkan)*



### BAB III METODELOGI PENELITIAN

#### 3.1 Bahan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah:

1. Serbuk grafit dengan ukuran 150  $\mu\text{m}$  (purity 99%)
2. Air suling / aquades ( $\text{H}_2\text{O}$ )
3. Asam sulfat 98% ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ )
4. Es
5. Natrium nitrat ( $\text{NaNO}_3$ )
6. Potassium permanganat ( $\text{KMnO}_4$ )
7. Hidrogen peroksida ( $\text{H}_2\text{O}_2$ )
8. Asam klorida 35% ( $\text{HCl}$ )
9. Barium klorida ( $\text{BaCl}_2$ )
10. Amonia Hidroksida ( $\text{NH}_4\text{OH}$ )
11. Nikel foam
12. Carbon Cloth
12. Natrium sulfat ( $\text{Na}_2\text{SO}_4$ )

#### 3.2 Alat

Peralatan yang digunakan untuk penelitian ini:

1. Neraca Analitik (Mettler Toledo)  
Alat ini digunakan untuk mengukur massa serbuk grafit,  $\text{KMnO}_4$ ,  $\text{NaNO}_3$ , grafit oksida,  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , dan *Nickel Foam*
2. Mikropipet  
Pipet yang digunakan adalah mikropipet untuk mengambil larutan  $\text{NH}_4\text{OH}$ .
3. Pengaduk (Spatula)  
Digunakan untuk mengaduk larutan.
4. Hot Plate with Magnetic Stirrer  
Alat ini digunakan untuk mencampur dan mengaduk larutan agar homogen serta untuk proses *drying Graphene* dari hasil proses *hydrothermal*.
5. Furnace (*Thermolyne*)  
Digunakan untuk proses pembuatan GO dan *Graphene*.



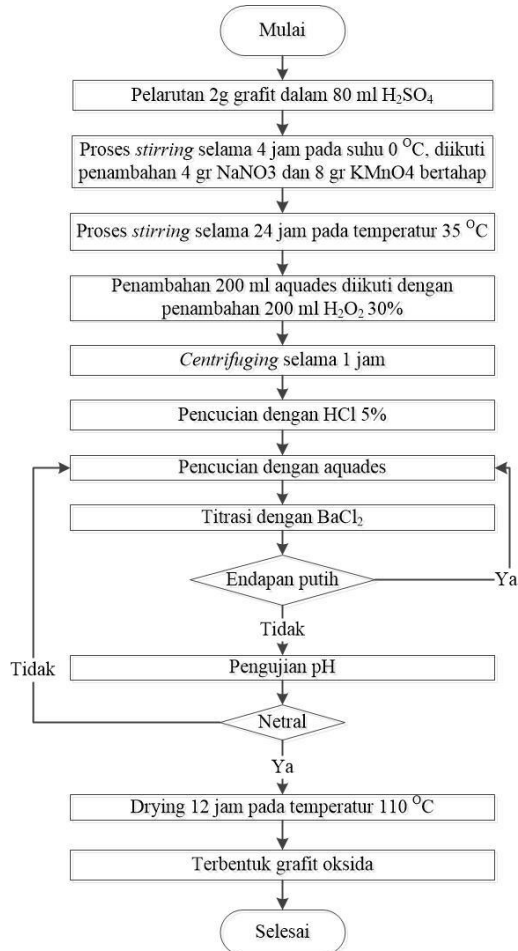
6. Autoclave  
Digunakan untuk proses *hydrothermal*.
7. Erlenmeyer  
Digunakan sebagai tempat larutan.
8. Ice bath  
Digunakan untuk tempat peletakan es selama pembuatan grafit oksida.
9. Centrifuge  
Digunakan untuk memisahkan partikel terdispersi.
10. Ultrasonic Cleaner  
Digunakan untuk homogenisasi dan pengelupasan lembaran *graphite oxide* menjadi *Graphene oxide*.
11. Gelas Beaker  
Digunakan untuk tempat aktivitas kimia
12. Instrumen Karakterisasi Material  
*X-ray diffraction* (XRD) untuk mengetahui senyawa yang terkandung dalam suatu sampel dan struktur kristalnya, *Scanning Electron Microscope* (SEM) dan EDX untuk menganalisis morfologi dan ukuran partikel, *Fourier Transform Infrared* untuk mengetahui jenis gugus fungsi yang terkandung pada material, Uji *Cyclic Voltammetry* (CV) untuk mengetahui nilai kapasitansi elektroda superkapasitor berbahan *Graphene*.

### 3.3 Metode Penelitian

Proses pembuatan elektroda berbahan *Graphene* ini dilakukan melalui dua tahap proses, yaitu proses sintesis *Graphene* menggunakan metode Hummer yang telah dimodifikasi dan proses pendepositan *Graphene* pada nickel foam dan membentuk elektroda.



### 3.3.1. Sintesis Grafit Oksida

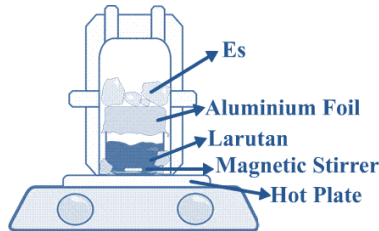


**Gambar 3. 1** Diagram alir sintesis grafit oksida

Grafit oksida merupakan bahan utama pembuatan *Graphene* yang dibuat dari oksidasi grafit dalam larutan asam. Bahan yang digunakan dalam proses oksidasi adalah serbuk grafit,  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{NaNO}_3$ , dan  $\text{KMnO}_4$ . Proses sintesis diawali

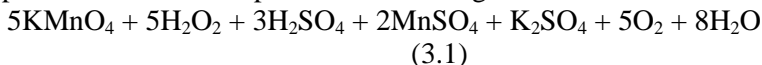


dengan men-*stirring* 2 g serbuk grafit di dalam 80 ml larutan  $\text{H}_2\text{SO}_4$  98% pada temperatur *icebath* (approx  $5^\circ\text{C}$ ) selama 4 jam. Saat proses *stirring* berjalan selama 2 jam dilakukan penambahan 4 g  $\text{NaNO}_3$  dan 8 g  $\text{KMnO}_4$  secara bertahap dan bergantian kedalam larutan.



**Gambar 3. 2** Proses stirring pada temperatur *icebath* (approx  $5^\circ\text{C}$ )

Larutan kemudian dikeluarkan dari *icebath* dan dilanjutkan *stirring* pada temperatur  $35^\circ\text{C}$  selama 20 jam. Setelah *stirring* selama 20 jam, ditambahkan 200 ml aquades kedalam larutan secara bertahap, karena penambahan aquades dalam larutan asam diikuti dengan pelepasan kalor. Proses dilanjutkan dengan men-*stirring* larutan selama 1 jam agar larutan menjadi homogen. Setelah 1 jam ditambahkan 20 ml  $\text{H}_2\text{O}_2$  untuk menghilangkan kandungan  $\text{KMnO}_4$  sisa dalam larutan.. Reaksi penambahan  $\text{H}_2\text{O}_2$  dapat dituliskan sebagai berikut.



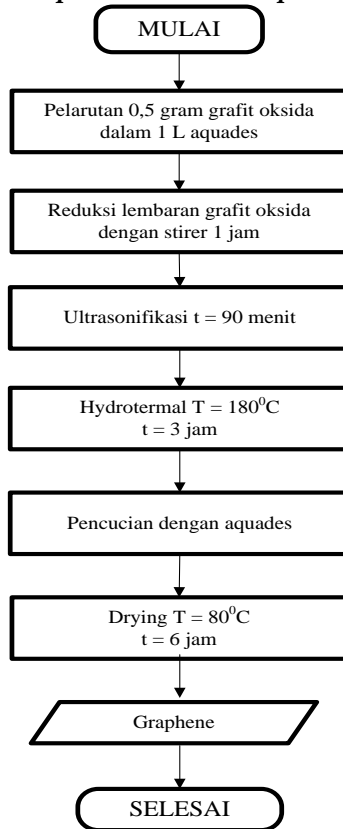
Larutan kemudian dibiarkan dalam keadaan ter-*stirring* selama 30 menit. Selanjutnya dilakukan proses sentrifugasi. Dari proses sentrifugasi diambil padatan. Selanjutnya dilakukan pencucian menggunakan  $\text{HCl}$  5% (0.01 M) untuk menghilangkan ion-ion logam yang tersisa. Proses pencucian selanjutnya menggunakan aquades secara berkala untuk menetralkan pH. Untuk menguji keberadaan ion sulfat dan pH netral dilakukan titrasi dengan  $\text{BaCl}_2$  1M. Apabila pH telah netral dan tidak terdapat endapan saat titrasi  $\text{BaCl}_2$  maka dilanjutkan proses



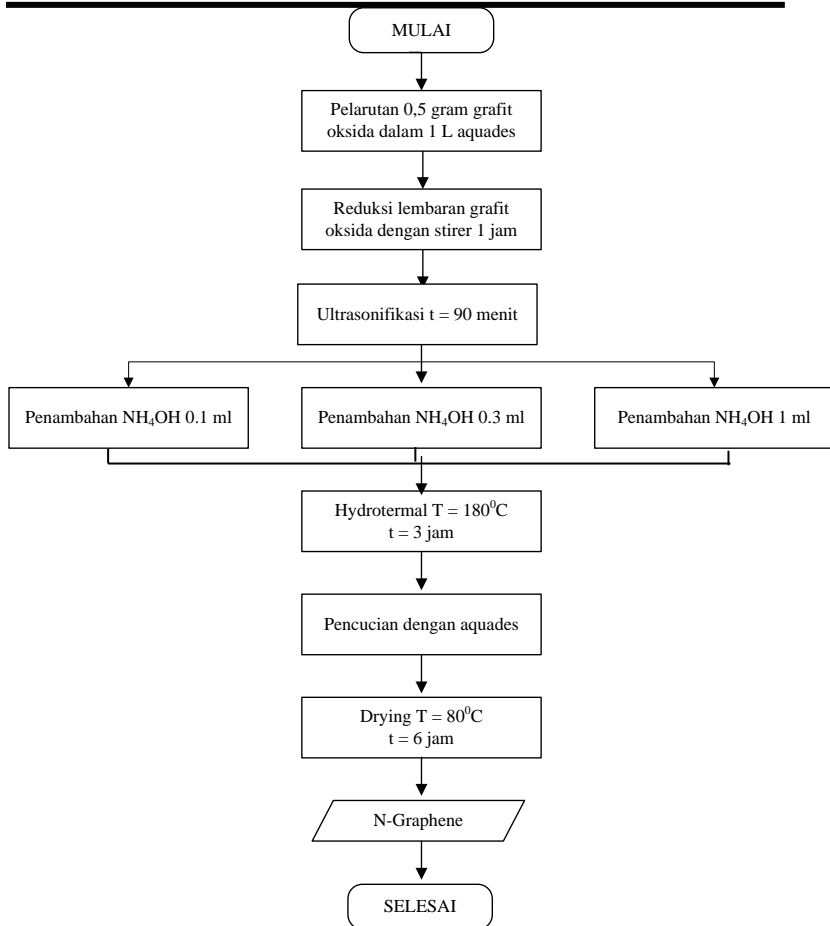


drying pada temperatur  $110^{\circ}\text{C}$  selama 12 jam untuk memperoleh grafit oksida.

### 3.3.2. Sintesis *Graphene* dan *N- Graphene*



**Gambar 3. 3** Diagram Alir Sintesis *Graphene*



**Gambar 3. 4** Diagram Alir Sintesis N-Graphene

*Graphene* disintesis dengan cara mereduksi grafit oksida menjadi *Graphene* oksida, kemudian dilanjutkan dengan mereduksi *Graphene* oksida menjadi *Graphene* (*Reduced GrapheneOxide/rGO*). Pembuatan *Graphene* oksida dimulai dengan cara melarutkan 0,5 gram grafit oksida ke dalam 1 L

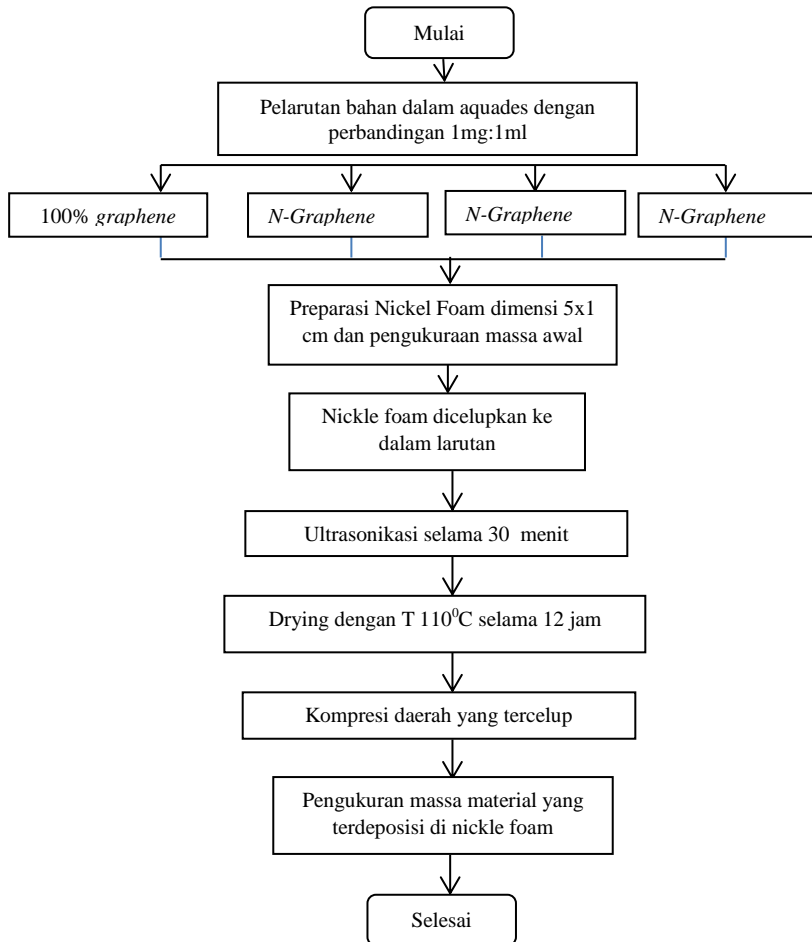


aquades, kemudian di *stirring* sampai larutan menjadi homogen. Setelah itu, dilakukan proses ultrasonikasi dengan waktu ultrasonikasi 90 menit.

Untuk pembuatan *N-Graphene* larutan rGO ditambah amonia hidroksida dengan variasi 0.1 ml, 0.3 ml dan 1 ml. Selanjutnya, direduksi dengan menggunakan metode *hydrothermal*. *Graphene* oksida dimasukan *autoclave* untuk dilakukan proses hidrotermal di dalam *muffle furnace* dengan temperatur 180 °C selama 3 jam kemudian dicuci dengan aquades beberapa kali.



### 3.3.3 Pembuatan Elektroda



**Gambar 3. 5** Diagram alir pembuatan Elektroda Nickel Foam

*Graphene* ditimbang dan ditambah aquades dengan perbandingan 10 mg : 1ml. Kemudian diaduk menggunakan mesin stirer dengan kecepatan 300 rpm selama 1 jam. Kemudian



larutan digunakan untuk mendepositkan ke dalam elektroda dengan menggunakan ultrasonikasi selama 30 menit.

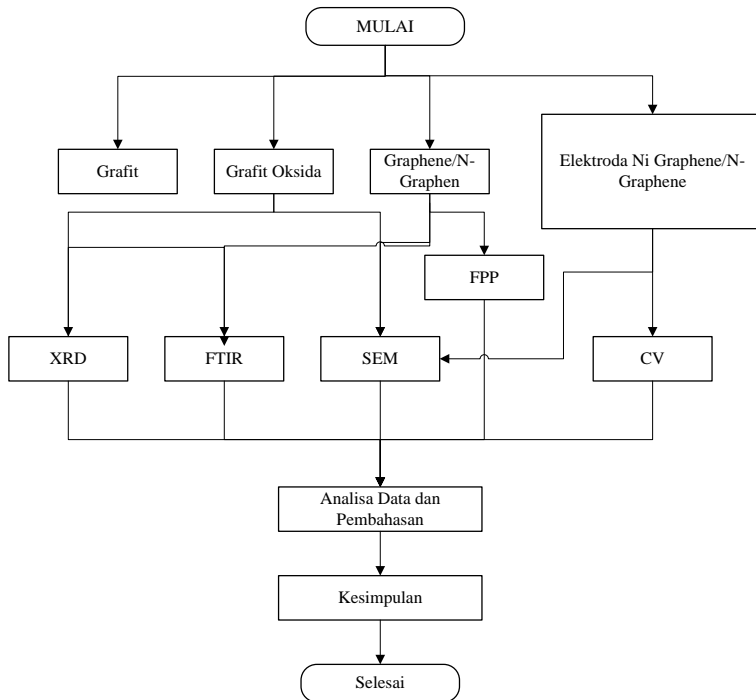
Elektroda untuk pengujian CV adalah *nickel foam*. Nickel foam dibuat dengan cara memotong nickel foam berukuran 5 x 1 cm lalu ditimbang untuk mengetahui massa nickel foam. Kemudian mencelupkan nickel foam ukuran 5 x 1 cm di dalam larutan yang terdapat N-*Graphene* yang telah dibuat dan di ultrasonifikasi

Selanjutnya *Nickel Foam* dikeringkan dengan proses drying di dalam *muffle furnace* pada  $T=110^{\circ}\text{C}$  selama 12 jam. Setelah kering, spesimen di *press*. Nickel foam lalu ditimbang sekali lagi untuk mengetahui massa *Graphene* yang terdeposit kedalam pori-pori nickel foam. Elektroda yang sudah siap seperti digunakan untuk pengujian *Cyclic Voltammetry* (CV) dengan larutan elektrolit  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ .



### 3.4 Pengujian

Pada penelitian ini, kebenaran dari teori dibuktikan dengan data. Adapun data pada penelitian ini diperoleh dari pengujian- pengujian sebagai berikut:



**Gambar 3. 6** Diagram alir pengujian

#### 3.4.1 Scanning Electron Microscopy (SEM) dan EDS

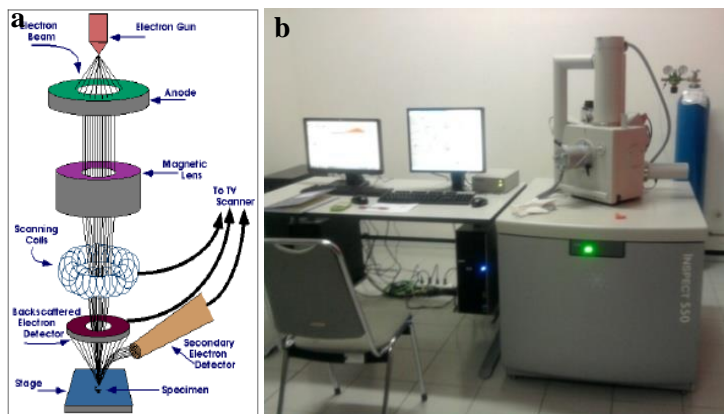
Mikroskop elektron merupakan mikroskop yang memanfaatkan pancaran elektron berenergi tinggi untuk memeriksa objek dalam skala yang sangat kecil. Pengamatan ini memberikan informasi mengenai topografi (jenis permukaan objek), morfologi (bentuk dan ukuran partikel), komposisi (unsur



dan senyawa beserta jumlah relarif masing-masing) menggunakan EDS (*Energy Dispersive X-Ray analysis*).

Untuk menghasilkan gambar pancaran elektron dari *electron gun* difokuskan pada *fine probe* yang di *scan* melintasi permukaan spesimen. Pancaran diperkuat dengan adanya koil. Setiap titik spesimen yang ditumbuk elektron membentuk radiasi elektromagnetik. Pancaran elektron yang mengenai permukaan sampel akan dihamburkan dan ditangkap oleh *Back Scatter electron detector (BSE)* dan *secondary electron detector*. Kemudian hasilnya diterjemahkan dalam bentuk gambar pada display. Dengan adanya BSE maka gambar hasil SEM akan memiliki gradasi warna, bagian berwarna terang tersusun atas material ringan dan bagian yang agak gelap adalah material berat. Mekanisme kerja dan Bentuk Instrumen SEM diperlihatkan pada

**Gambar 3.7**



**Gambar 3.7** (a) Skema kerja SEM (b) Scanning Electron Microscopy (SEM) Inspect S50

Pengujian EDS (*Energy Dispersive X-ray Spectroscopy*), bertujuan untuk mengetahui apa saja jenis unsur penyusun material yang ada dalam sampel, dan sekaligus untuk mengetahui nilai % berat dan % atomik dari semua unsur penyusun tersebut. Pengujian EDS dilakukan dengan menggunakan alat SEM Jeol JSM-7001F, yang dilengkapi dengan software INCA .



### 3.4.2 X-Ray Diffraction (XRD)

*X-Ray Diffraction* (Philips Analytical) pada **Gambar 3.8 (a)** merupakan analisis teknik untuk mengamati hamburan sinar-x dari material kristalin. Setiap material menghasilkan karakteristik sinar-x tertentu. Intensitas sinar dan besar sudut hamburan menggambarkan struktur atom kristalin. Untuk mengetahui struktur kristal yang sesuai, data dan grafik hasil pengujian XRD dicocokkan dengan menggunakan JCPDS (*Joint Committee of Powder Diffraction Standard*).



**Gambar 3. 8** Instrumen XRD PAN alytcal

Secara umum prinsip kerja XRD yaitu generator tegangan tinggi yang berfungsi sebagai pembangkit daya sumber sinar-X pada bagian *x-ray tube*. Sampel berbentuk serbuk yang telah dimampatkan diletakkan diatas wadah yang dapat diatur posisinya. Lalu berkas sinar-X ditembak ke sampel dan sinar-x didifraksikan oleh sampel, kemudian berkas sinar-x masuk ke alat pencacah. Intensitas difraksi sinar-X ditangkap oleh detector dan diterjemahkan dalam bentuk kurva. Kondisi refleksi sinar-x dirumuskan dengan persamaan 3.1

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (3.1)$$

Karakterisasi material menggunakan XRD menghasilkan beberapa data baik data kualitatif maupun data kuantitatif seperti pada **Tabel 3.1**





**Tabel 3. 1** Informasi yang terkandung dalam karakter tinggi, posisi serta lebar dan bentuk puncak difraksi (Pratapa, 2004)

No	Karakter	Informasi dari material
1	Posisi puncak ( $2\theta$ )	<ul style="list-style-type: none"><li>• Fasa kristal/identifikasi</li><li>• Struktur kristal</li><li>• Parameter kisi</li><li>• Regangan seragam</li></ul>
2	Tinggi puncak (intensitas)	<ul style="list-style-type: none"><li>• Identifikasi</li><li>• Komposisi</li><li>• Hamburan tak koheren</li><li>• <i>Extinction</i></li><li>• <i>Preferred-orientation</i></li></ul>
3	Lebar dan bentuk puncak	<ul style="list-style-type: none"><li>• Ukuran kristal (bukan partikel atau <i>grain</i>)</li><li>• Distribusi ukuran</li></ul>

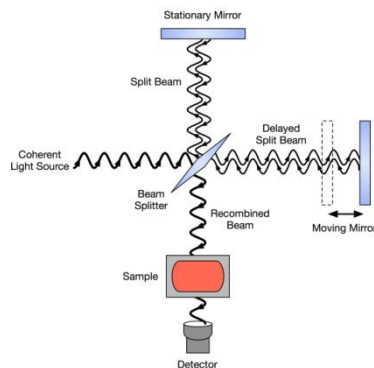
### 3.4.3. Pengujian Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR)

FTIR merupakan salah satu instrumen spektroskopi. Pada spektroskopi infra merah, radiasi inframerah dipancarkan mengenai sampel. Sebagian radiasi infra merah diserap oleh sampel sebagian yang lain ditransmisikan. Hasil spektrum infra merah menggambarkan penyerapan molekul dan transmisi, menggambarkan ciri khas sampel. Setiap molekul memiliki penyerapan berbeda sesuai dengan pola vibrasi dan pola ikatan antar atomnya. Tidak ada dua molekul yang menghasilkan spektrum infra merah yang sama. Oleh karena itu spektroskopi infra merah sangat berguna untuk berbagai analisis. FTIR dapat memberikan informasi mengenai material yang belum diketahui (teridentifikasi), mengenai kualitas sampel, dan mengetahui jumlah komponen dalam suatu campuran. Gambar 3.9 memperlihatkan instrumen uji FTIR.



**Gambar 3.9** Alat Uji FTIR

Prinsip kerja FTIR adalah berdasarkan penyerapan radiasi infra merah. Infra merah dipancarkan melalui interferometer kemudian dipancarkan melalui sampel, sebagian radiasi infrared diserap sampel dan sebagian lain dipancarkan kembali dan tertangkap oleh *detector*. Besarnya radiasi infra merah yang tertangkap oleh detektor kemudian diubah menjadi spektrum oleh Interferogram. Mekanisme kerja FTIR ini diperlihatkan pada Gambar 3.10



**Gambar 3.10** Skema Prinsip Kerja FTIR (Steven Voughan, 2009)



### 3.4.4 Cyclic Voltammetry

CV test adalah digunakan untuk mengetahui nilai kapasitansi dari elektroda *nickel foam-Graphene*, *nickel foam- N-Graphene*, *Nickel foam-Graphene/N-Graphen* dengan variasi tertentu. Elektroda untuk pengujian ini dengan mendepositkan material yang diinginkan ke dalam *nickel foam*. Larutan yang digunakan untuk pengujian elektroda adalah  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  1M. *Potential window* yang digunakan dalam pengujian CV ini yaitu 0-0,8 V. Hal ini dilakukan karena menyesuaikan rentang potensial kerja kapasitor. Instrumen yang digunakan adalah AUTOLAB PG STAT 302 METHROM (Netherland), dengan *Counter Electrode* adalah platina.

Prinsip kerja voltametri adalah dengan memberikan sejumlah beda potensial sehingga akan terukur besar sesuai dengan polarografi dari sampel elektroda yang digunakan. Dalam CV, nilai kapasitansi juga dipengaruhi oleh reaksi redoks. Reaksi ini terjadi karena sampel bereaksi dengan elektrolit yang kuat sehingga nilai kapasitansi yang terbaca, tidak murni milik sampel. Untuk itu perlu menggunakan sampel dan elektrolit yang tepat jika ingin menghindari redoks pada sampel.

Konsep hubungan antara pengujian ini dengan penyimpanan muatan pada sampel adalah saat alat memberikan sejumlah potensial, maka sejumlah muatan akan menempel pada permukaan aktif elektroda kerja. Dari sejumlah muatan yang menempel tersebut, akan terbaca berapa besar arus yang mengalir dengan kondisi beda potensial yang berbeda. Hasil yang diperoleh pada pengujian ini yaitu grafik *cyclic voltammetry*. Untuk menghitung besarnya kapasitansi spesifik digunakan persamaan di bawah ini. Di samping itu, hasil dar CV juga menggambarkan sifat kapasitif elektrokimia dari elektroda kerjanya.

$$C = \frac{\int i \, dV}{2 w \gamma \Delta E} \quad (3.2)$$

Dimana :




---

C	: Kapasitansi spesifik (Farad/gr)
I	: Arus (Ampere)
w	: Massa Elektroda Grafena (gr)
$\gamma$	: Scan Rate (mV/s)
$\Delta E$	: Potential Window (Volt)

Dari hasil pengujian CV juga dapat diketahui nilai Densitas Energi (E) dan Densitas Power (P) dengan menggunakan rumus di bawah ini.

$$E = 0,5 \times C \times (\Delta V)^2 \quad (3.3)$$

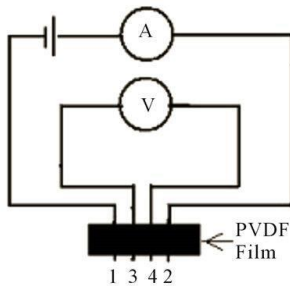
$$P = \frac{E}{t} \quad (3.4)$$

Dimana :

E	: Densitas Energi (Wh/kg)
C	: Kapasitansi (Farad/gr)
$(\Delta V)$	: Potential Window (Volt)
P	: Densitas Power (W/kg)
t	: Waktu discharge (sekon)

### 3.4.5 Four Point Probe (FPP)

Four point probe (FPP) test adalah salah satu bentuk pengujian elektrik. Pengujian ini bertujuan untuk mengukur resistivitas dari material semikonduktor. Pengujian ini dapat dilakukan untuk mengukur baik material yang berupa padatan maupun lapisan tipis. Pengujian FPP rangkaian listrik yang terdapat voltmeter dan amperemeter. Dua probe terluar memberikan sejumlah arus listrik, sedangkan dua probe bagian dalam mengukur tegangan listrik menggunakan voltmeter untuk mengetahui resistivitas sampel.



**Gambar 3. 11** (a) skema rangkaian (Hartono dkk. 2013) (b) Pengujian FPP

Sebelum arus dialirkan melalui probe, keempat probe disentuhkan ke permukaan sampel. Setelah itu arus dialirkan melalui probe 1 dan 4. Dengan cara seperti ini arus dialirkan/didistribusikan melalui sampel. Probe 2 dan 3 disentuhkan pada sampel diantara probe 1 dan 4 dimana arus mengalir, probe 2 dan 3 berhubungan dengan voltmeter untuk mengukur tegangan listrik. Saat arus mengalir akan terjadi perubahan tegangan pada volt meter. Perubahan tegangan ini digunakan untuk mengukur nilai resistivitas dari sampel berdasarkan persamaan (3.9) Ada dua persamaan yang digunakan untuk menghitung nilai resistivitas tergantung jenis sampelnya, yaitu untuk spesimen tebal (*bulk sample*) dan berupa lembaran (*sheet*).

Spesimen tebal memiliki ketentuan bahwa tebal spesimen harus lebih dari  $3/2$  jarak antar probe dan untuk tebal sampel lembaran harus kurang dari  $3/2$  jarak antar probe. Karena *Graphene* merupakan material berupa lembaran tipis, maka mekanisme aliran arusnya membentuk pola menyerupai lingkaran seperti bola. Dengan bentuk bidang tersebut, luasan dapat diasumsikan  $A = 2\pi xt$ , dimana  $x$  adalah jari-jari bola dan  $t$  adalah tebal sampel. Untuk perhitungan resistivitas, penurunan rumusnya :

$$\Delta R = \int_{x1}^{x2} \rho \left( \frac{dx}{A} \right) = \int_s^{2s} \frac{\rho}{2\pi t} \left( \frac{dx}{x} \right) = \int_{x1}^{x2} \frac{\rho}{2\pi t} \ln(x) \quad (3.5)$$



$$R = \frac{\rho}{2\pi t} \ln(2) \quad (3.6)$$

$$R = \frac{V}{I} \quad (3.7)$$

$$\rho = \frac{\pi t}{\ln 2} \times \frac{V}{I} \quad (3.8)$$

Dimana :

- $\rho$  : resistivitas ( $\Omega\text{cm}$ )  
 $t$  : tebal material (cm)  
 $V$  : tegangan output (Volt)  
 $I$  : arus listrik (Ampere)

Dari nilai resistivitas, dapat diketahui besar konduktivitas sampel dengan persamaan :

$$\sigma = \frac{1}{\rho} \quad (3.9)$$

Dimana :

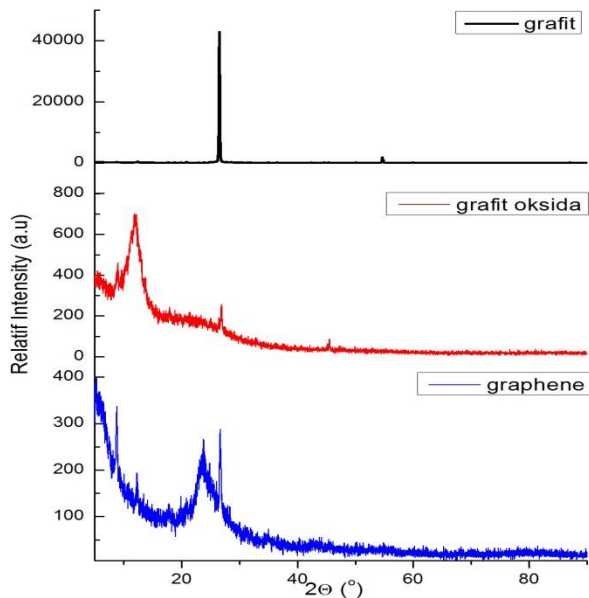
- $\sigma$  : konduktifitas (S/cm)



## BAB IV ANALISA DATA DAN PEMBAHASAN

### 4.1 Pengujian X-Ray Diffractometry (XRD)

Pengujian XRD dilakukan pada sampel grafit, grafit oksida, dan *graphene*. Alat yang digunakan dalam pengujian yaitu XRD Phillip Analitical dengan parameter sudut  $2\theta = 5^{\circ}$ - $90^{\circ}$  dengan panjang gelombang Cu-K $\alpha$  1.54060 Å. Dalam pengujian ini ditujukan untuk mengetahui perbedaan posisi puncak dari sampel dimana merupakan indikasi perubahan struktur dari material grafit hingga menjadi *graphene* dan perbedaan *graphene* dengan N-*graphene*. **Gambar 4.1** menjelaskan perbandingan hasil uji XRD pada sampel grafit, grafit oksida, dan *graphene*.



**Gambar 4.1** Perbandingan hasil XRD pada sampel grafit, grafit oksida, *graphene*



Dari **Gambar 4.1** dapat diketahui bahwa terdapat perbedaan posisi puncak pada sampel grafit, grafit oksida, dan *graphene*. Pada sampel grafit terdapat puncak (002) pada posisi  $2\theta = 26.53^\circ$  dengan nilai dari  $d_{\text{spacing}}$  sebesar 3.36 Å dengan bentuk puncak yang tajam dan intensitas yang tinggi. Hasil XRD pada grafit tersebut menunjukkan bahwa sifat kristalinitas grafit sangat baik. Nilai intensitas XRD yang semakin tinggi menunjukkan kristalinitas yang semakin baik (Hye-Min Yoo, 2011). Setelah proses oksidasi pada grafit maka grafit berubah menjadi grafit oksida. Puncak dari grafit oksida berbeda dengan grafit yaitu berubah menjadi puncak (001) pada posisi  $2\theta = 12.21^\circ$  dengan nilai  $d_{\text{spacing}}$  yang lebih besar menjadi 7.33 Å dan intensitas yang lebih rendah.

Perubahan posisi puncak, nilai  $d_{\text{spacing}}$  dan intensitas dipengaruhi oleh gugus-gugus fungsional oksigen yang diakibatkan oleh proses oksidasi dalam material grafit. Hasil dari pengujian ini sesuai dengan yang dilakukan oleh Pei (2015), dimana gugus-gugus oksigen membentuk lapisan atom hidrofilik yang menjadikan grafit oksida mudah larut dalam air. Pada hasil XRD grafit oksida masih terdapat grafit pada posisi  $2\theta = 26.9^\circ$ . Untuk mendapatkan *graphene* maka diperlukan proses reduksi grafit oksida dengan metode hidrotermal. *Gaphene* mempunyai profil peak yang lebar pada posisi  $\sim 23\text{--}24^\circ$ . Adapun hasil XRD dari *graphene* berada pada puncak (002) posisi  $2\theta = 23.89^\circ$  dengan nilai  $d_{\text{spacing}} = 3.72$  Å. Adapun nilai intensitasnya menurun dibandingkan dengan grafit dan grafit oksida.

Nilai peak dari grafit oksida dan *graphene* ini sudah sesuai dengan penelitian yang telah dilakukan oleh Zhang, et al(2019). Menurunnya intensitas pada *graphene* terjadi karena jumlah layer *graphene* semakin berkurang dengan ditunjukkan oleh nilai  $d_{\text{spacing}}$  yang menurun diakibatkan proses *chemical exfoliation* (pengelupasan kimia) dan struktur kristal *graphene* yang cenderung mempengaruhi struktur amorf.





**Tabel 4.1** Hasil perhitungan nilai  $d_{\text{spacing}}$  dari sampel grafit, grafit oksida, dan *graphene*

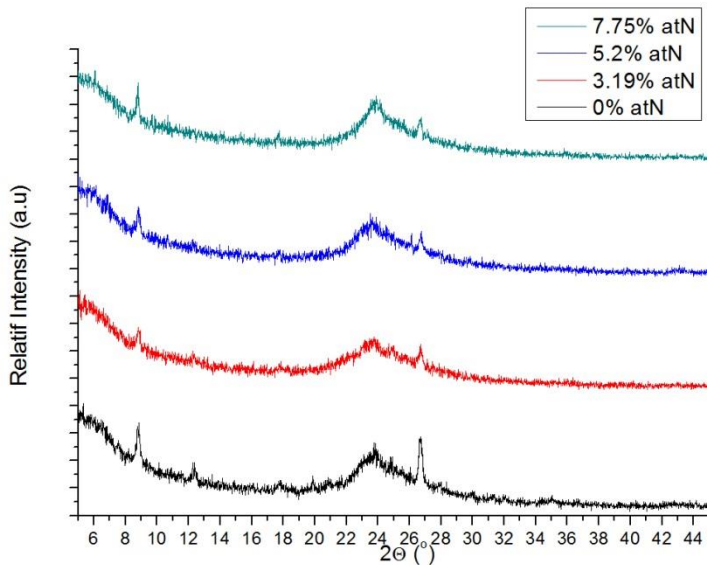
No	Sampel	$d_{\text{spacing}}$ (Å)
1	Grafit	3.36
2	Grafit Oksida	7.33
3	Graphene	3.72

Berdasarkan persamaan **3.2** diperoleh nilai  $d_{\text{spacing}}$  pada **Tabel 4.1** dimana peningkatan  $d_{\text{spacing}}$  (jarak antar layer) terlihat dari sampel grafit ke grafit oksida. Sudah dijelaskan sebelumnya bahwa hal ini disebabkan oleh gugus fungsional dari oksigen. Untuk nilai  $d_{\text{spacing}}$  dari *graphene* mendekati nilai dari grafit. Hal ini dapat terjadi karena proses reduksi dari grafit oksida itu sendiri dimana reduksi tersebut menghilangkan gugus oksigen. Adapun hasil dari struktur *graphene* hanya berisi atom karbon sebagaimana grafit. Namun, nilai jarak antar layer dari *graphene* lebih besar dibandingkan grafit, hal ini mengindikasikan bahwa sedikit gugus fungsional yang tersisa.

**Tabel 4.2** Hasil perhitungan nilai  $d_{\text{spacing}}$  dari sampel *graphene* dan N-*graphene* dengan variasi %at

%at N	$2\theta$ (°)	$d_{\text{spacing}}$ (Å)
0	23.89	3.72
3.9	23.72	3.73
5.12	23.77	3.74
7.75	23.79	3.75

Berdasarkan **Gambar 4.2** dan **Tabel 4.2** dapat diketahui bahwa pemberian doping N pada *graphene* berpengaruh pada struktur kristalnya. Hasil XRD menunjukkan bahwa peak  $12.21^\circ$  dari grafit oksida bergeser ke posisi  $23.89^\circ$  serta memiliki  $d_{\text{spacing}}$  3.72 Å yang mengindikasikan bahwa grafit oksida telah tereduksi menjadi *Graphene*.



**Gambar 4.2** Perbandingan hasil XRD pada sampel sampel graphene dan N-graphen dengan variasi %at

Untuk penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml menunjukkan peak  $23.79^\circ$  dan  $d_{\text{spacing}}$   $3.73\text{\AA}$ . Penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.3 ml menunjukkan peak  $23.77^\circ$  dan  $d_{\text{spacing}}$   $3.74\text{\AA}$ . Penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  1 ml menunjukkan peak  $23.72^\circ$  dan  $d_{\text{spacing}}$   $3.75\text{\AA}$ . Tidak ada perubahan pada lattice parameter dengan penambahan atom nitrogen menurut Ting Ling (2015) doping nitrogen tidak akan berpengaruh terhadap struktur dari *graphene*, ditambahkan nitrogen atau tidak struktur kristalnya tidak akan berubah. Dari **tabel 4.2**, dapat dilihat terdapat pergeseran puncak untuk masing-masing nilai doping. Pada ketiga peak secara umum pergeseran terjadi ke derajat yang lebih rendah saat terjadi nilai doping. Berdasarkan persamaan Bragg  $d_{\text{spacing}}$  dari N-graphen menjadi lebih besar dengan ditambahkan doping atom nitrogen, menurut



Yu (2015)  $d_{\text{spacing}}$  yang bertambah besar dikarenakan keberadaan atom nitrogen pada *graphene* memiliki jari-jari atom yang lebih besar dari carbon sehingga atom nitrogen telah berhasil didoping pada *graphene*.

Pada grafik juga terlihat adanya perubahan FWHM (broadening) pada *graphene* akibat dari pertambahan nilai doping. Peak broadening ini dapat disebabkan oleh beberapa indikasi seperti perubahan crystallite size. Untuk itu dilakukan analisis nilai crystallite size rata-rata (D) pada *graphene* dan N-*graphene* dengan menggunakan persamaan Scherrer pada Persamaan 4.1 berikut. (Culity, 1956)

$$D = \frac{K\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (4.1)$$

Dimana

D : Ukura Kristal

$\lambda$  : Panjang gelombang Cu-K $\alpha$  (1.54060 Å)

B : FWHM (rad)

K : konstanta Scherrer dengan nilai 0.9

Nilai crystal size tertinggi terdapat pada *graphene* yang tidak diberikan doping dengan nilai 404.69 nm, sementara yang terendah adalah *graphene* dengan doping 7.75% yaitu 203.06 nm. Dari tabel tersebut, semakin banyak komposisi doping maka nilai crystal size akan semakin turun, penurunan crystal size ini dapat disebabkan oleh adanya defect akibat doping nitrogen. Penelitian yang dilakukan oleh Geng (2011) menunjukkan hasil yang serupa yang mana dengan perhitungan menggunakan persamaan Scherrer juga menghasilkan penurunan nilai crystallite size rata-rata.

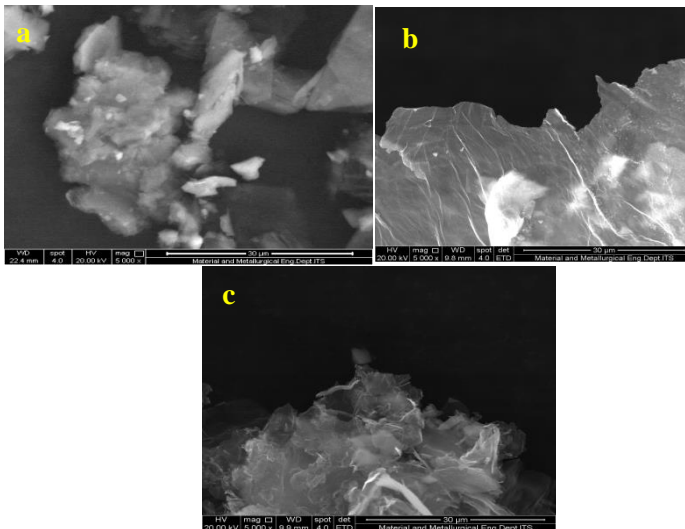
**Tabel 4.3** Ukuran Kristal material *Graphene/ N-Graphene*

%at N	FWHM (rad)	D(nm)
0	0.0035	404.69
3.19	0.0046	303.44
5.2	0.0046	303.47
7.75	0.0069	203.06



## 4.2 Hasil Pengujian SEM-EDS

Pengujian SEM dilakukan pada sampel grafit, grafit oksida, *graphene*, dan elektroda *nickel foam-graphene* (*Ni-graphene*) dengan variasi penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml, 0.3 ml dan 1 ml untuk membentuk *N-graphene*. Alat yang digunakan dalam pengujian SEM yaitu INSPECT S50.



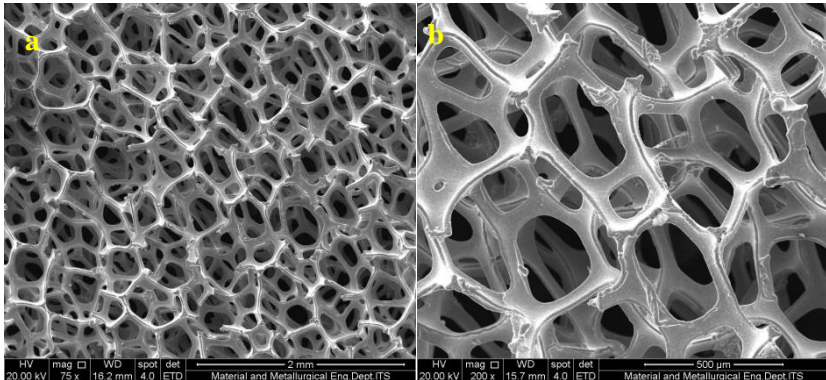
**Gambar 4.3** Hasil SEM 5.000x (a) grafit, (b) grafit oksida, (c) *Graphene* tanpa doping

Pengujian SEM dilakukan untuk mengetahui morfologi permukaan dari sampel-sampel tersebut. Pada **Gambar 4.3** ditunjukkan perbedaan permukaan morfologi dari sampel grafit, grafit oksida, dan *graphene*.

Berdasarkan **Gambar 4.3a** terlihat bahwa grafit memiliki morfologi dengan bentuk serupa serpihan atau flakes yang ukurannya kecil, menyebar, dan tidak beraturan. Setelah grafit mengalami oksidasi menjadi grafit oksida, maka morfologi yang terjadi menjadi lembaran-lembaran berlapis sehingga terlihat

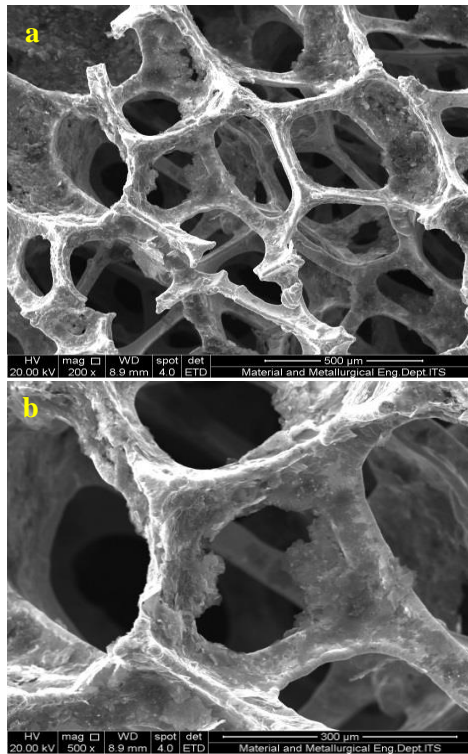


tebal seperti yang ditunjukkan **Gambar 4.3b**. Kemudian grafit oksida mengalami reduksi menjadi *graphene*. Pada **Gambar 4.3c** terlihat lembaran-lembaran sangat tipis dari *graphene* yang terbentuk akibat pelupasan (*chemical exfoliation*) grafit oksida.



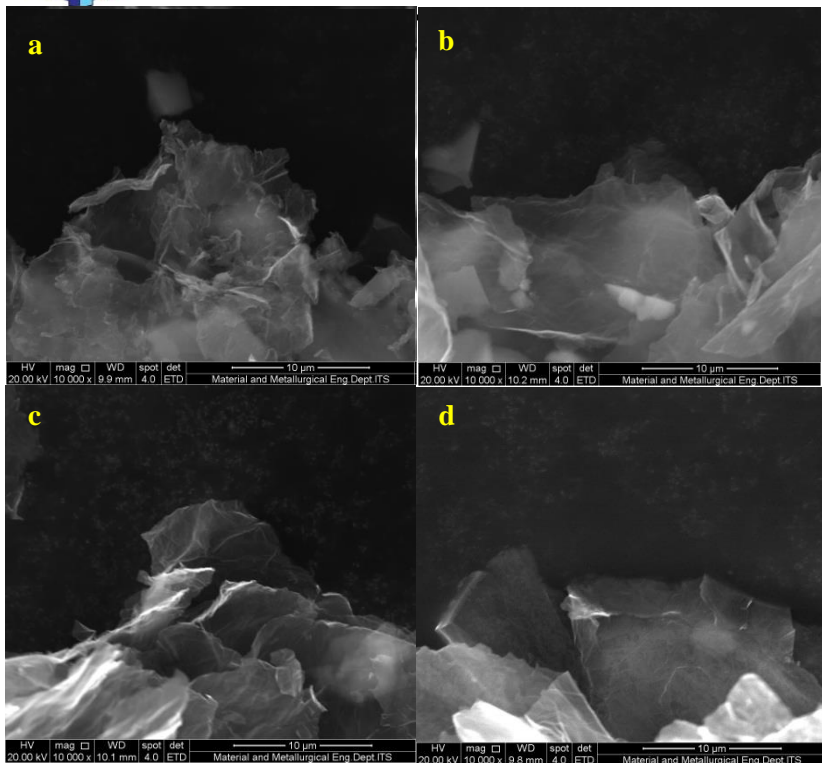
**Gambar 4.4** Hasil SEM *nickel foam* dengan perbesaran  
a) 75x b) 200x

**Gambar 4.4 (a-b)** menunjukkan SEM *image* dari *Nickel Foam* polos dengan bentuk seperti *network* atau *sponge*. Dengan bentuk seperti jaring, *Nickel Foam* yang berfungsi sebagai pengumpul arus akan memberikan akses yang lebih mudah bagi elektrolit serta meningkatkan luas area kontak akibat strukturnya yang berupa *porous*.



**Gambar 4.5** Hasil SEM *Nickel Foam* yang terdeposit *graphene*  
a) perbesaran 200x b) perbesaran 500x

Pengujian SEM juga dilakukan terhadap elektroda *Nickel Foam-Graphene* untuk mengetahui morfologi persebaran *Graphene* yang telah di depositkan pada *Nickel Foam*. Pada **Gambar 4.5**, nampak bahwa *Graphene* telah berhasil di depositkan. Terlihat pula bahwa *Graphene* yang berupa lembaran-lembaran tipis mengisi atau menutupi lubang yang ada di *Nickel Foam*.

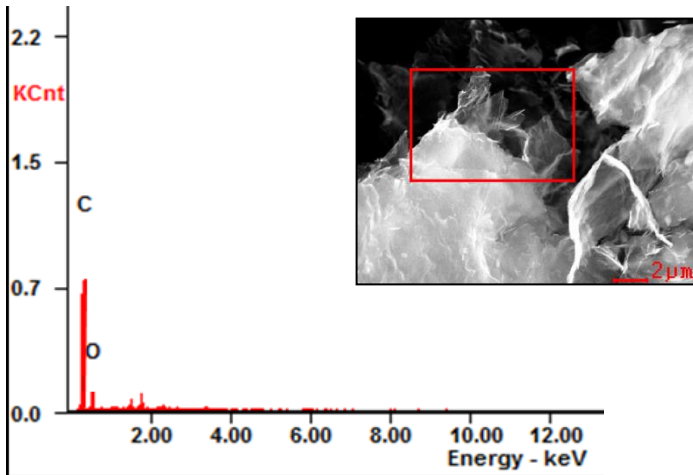


**Gambar 4.6** Hasil SEM perbesaran 10.000x a) *Graphene* tanpa doping ; N- *Graphene* dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  b) 0.1 ml b) 0.3 ml c) 1 ml

**Gambar 4.6** menunjukkan morfologi *graphene* hasil doping Nitrogen dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml, 0.3 ml dan 1 ml. Dari semua hasil tersebut, dapat kita lihat bahwa ke sampel *graphene* mempunyai bentuk morfologi yang hampir sama, yaitu berupa lembaran transparan tipis, yang terdiri dari beberapa layer *graphene* yang menumpuk sehingga terlihat lebih tebal, kadang juga terlihat adanya *single layer*. Menurut Geng (2011)



pengamatan morfologi untuk *graphene* dengan doping nitrogen terlihat sama dan sulit untuk dibedakan.



**Gambar 4.7** Hasil Kurva EDS Hasil untuk N-*graphene*

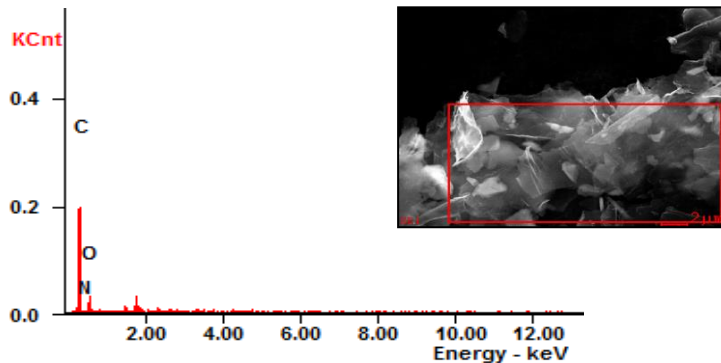
**Tabel 4.4** Komposisi unsur penyusun *graphene*

Element	Wt %	At %
C K	77.22	77.79
O K	22.78	22.21

Selanjutnya, dilakukan pengujian EDS terhadap *graphene*, *graphene* dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml, 0.3 ml dan 1 ml untuk mengetahui kandungan unsur yang terdapat di dalamnya. Hasil EDS untuk *graphene* ditunjukkan oleh **gambar 4.7** dan **Tabel 4.4**.

Dari Tabel diatas, dapat diketahui bahwa *graphene* tersusun atas unsur C dan O. Dari Tabel diatas, dapat dilihat bahwa nilai rasio atom C/O untuk *graphene* adalah sebesar 3.5:1.



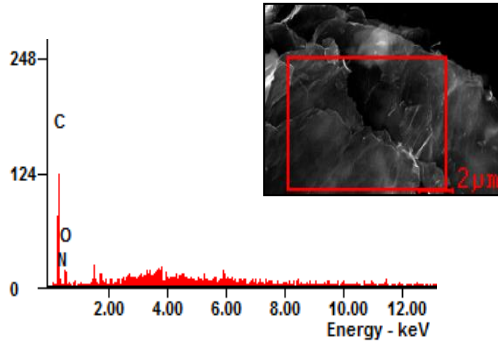


**Gambar 4.8** Hasil Kurva EDS untuk N-graphene  
NH<sub>4</sub>OH 0.1 ml

**Tabel 4.5** Komposisi unsur penyusun N-graphene NH<sub>4</sub>OH 0.1 ml

Element	Wt %	At %
<i>C K</i>	75.68	80.07
<i>N K</i>	03.39	03.19
<i>O K</i>	20.93	16.74

Dari Tabel diatas, dapat dilihat bahwa *graphene* doping nitrogen dengan penambahan NH<sub>4</sub>OH 0.1 ml mengandung atom nitrogen sebanyak 3.19%.

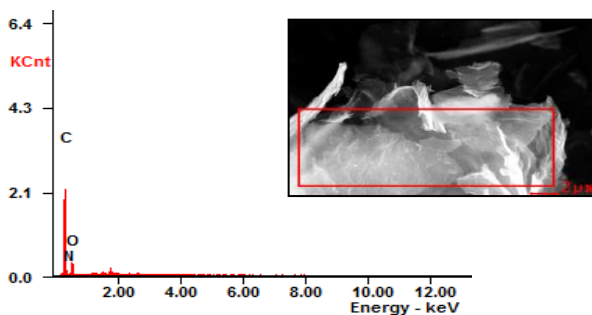


**Gambar 4.9** Hasil Kurva EDS untuk N-graphene  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.3 ml

**Tabel 4.6** Komposisi unsur penyusun N-graphene  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml

Element	Wt %	At %
C K	75.21	79.61
N K	05.31	05.2
O K	19.48	15.19

Dari Tabel diatas, dapat dilihat bahwa *graphene* doping nitrogen dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.3 ml mengandung atom nitrogen sebanyak 5.02%.



**Gambar 4.10** Hasil Kurva EDS untuk N-graphene  $\text{NH}_4\text{OH}$  1 ml



**Tabel 4.7** Komposisi unsur penyusun N-graphene NH<sub>4</sub>OH 1 ml

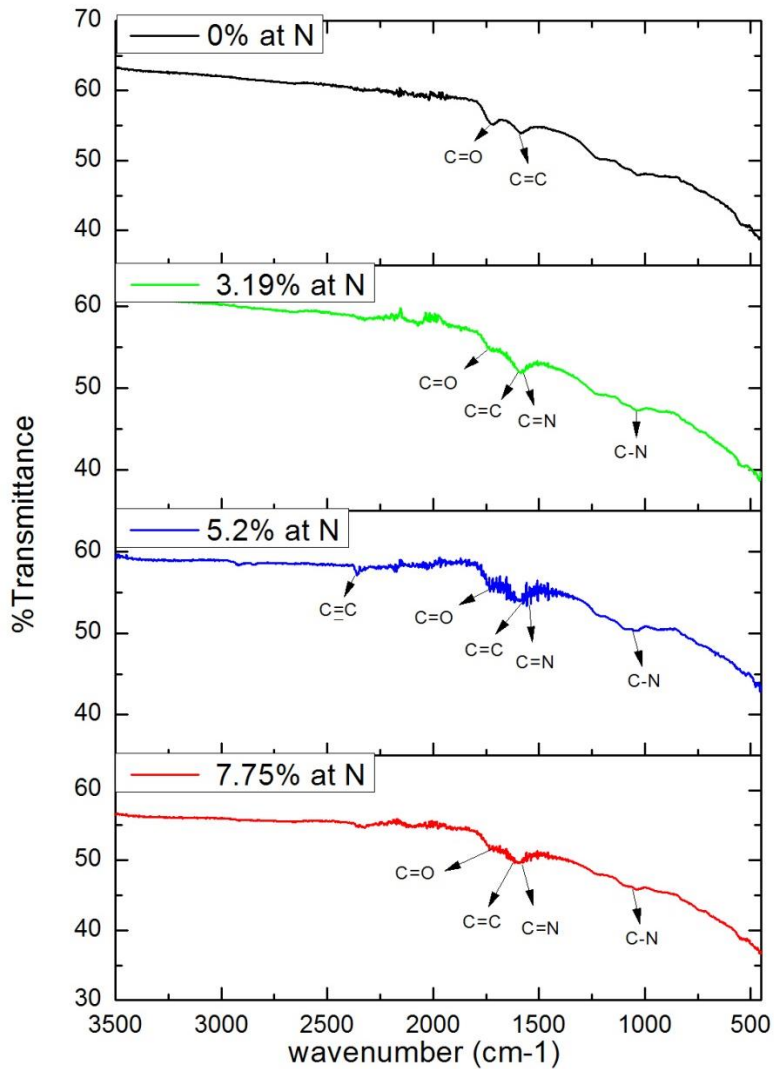
Element	Wt %	At %
<b><i>C K</i></b>	68.23	73.41
<b><i>N K</i></b>	08.24	07.75
<b><i>O K</i></b>	23.53	18.84

Dari Tabel diatas, dapat dilihat bahwa graphene doping nitrogen dengan penambahan NH<sub>4</sub>OH 1 ml mengandung atom nitrogen sebanyak 7.75%.

#### 4.3 Hasil Pengujian FTIR

Pengujian FTIR dilakukan terhadap *graphene* dan N-*graphene*, untuk mengetahui jenis ikatan apa saja yang ada di dalamnya, dan juga untuk membedakan antara *graphene* dan N-*Graphene*.

Dari **Gambar 4.11**, dapat dilihat bahwa pada *graphene* terdapat gugus C=C dan C=O. Untuk *graphene* dengan penambahan NH<sub>4</sub>OH 0.1 ml awalnya yang hanya terdapat gugus C=C dan C=O bertambah dengan adanya gugus C=N dan C-N. Pada *graphene* dengan penambahan NH<sub>4</sub>OH 0.3 ml terdapat gugus fungsi C=C, C-N, C=N dan C=O. *Graphene* dengan penambahan NH<sub>4</sub>OH 1ml memiliki gugus fungsi yang sama dengan *graphene* yang ditambahkan NH<sub>4</sub>OH yang lain yaitu terdapat gugus C=C, C-N, C=N, dan C=O. Adanya gugus C=N pada setiap *graphene* yang ditambahkan NH<sub>4</sub>OH menunjukan bahwa *graphene* telah berhasil didoping dengan atom nitrogen (Gong,2015).



**Gambar 4.11** Pola FTIR *graphene*, *graphene* dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml, 0.3 ml dan 1 ml.



**Tabel 4.8** Jenis gugus ikatan pada graphene  
(Gong,2015)

NO	Posisi Peak (cm <sup>-1</sup> )	Nama Peak
1	2356.73	C=N
2	1717.15	C=O
3	1595.7	C=N
4	1587.34	C=C
5	1083.25	C-N

#### 4. 4 Pengujian Four Point Prober (FPP)

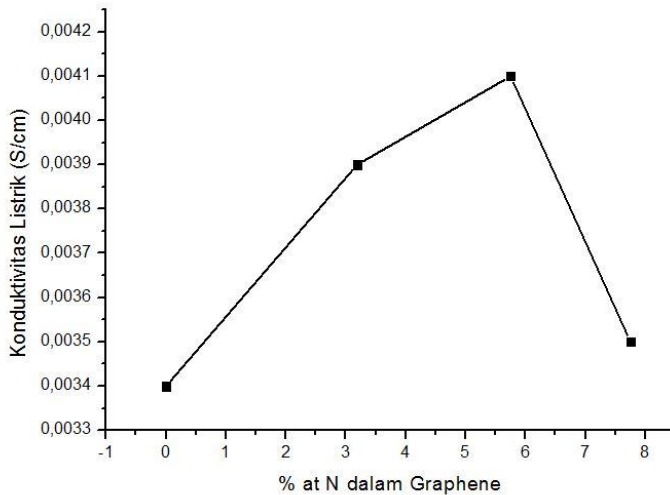
Pengujian dilakukan dengan menggunakan sumber tegangan 3 V dengan besar arus DC 0.2 A yang telah diatur nilainya memanfaatkan resistor variabel. Hasil pengujian diperlihatkan pada **Tabel 4.9**.

Perhitungan konduktifitas listrik dilakukan menggunakan persamaan **3.9** dan **3.10**. Berdasarkan tabel, dapat diketahui perbandingan konduktivitas beberapa material. trend nilai konduktifitas listrik material dari yang paling besar adalah graphene dengan penambahan NH<sub>4</sub>OH 0.3 ml dan menghasilkan 5.2% at N, graphene dengan penambahan NH<sub>4</sub>OH 0.1 ml dan menghasilkan 3.19% at N, graphene tanpa penambahan NH<sub>4</sub>OH dan graphene dengan penambahan NH<sub>4</sub>OH 1 ml dan menghasilkan 7.75% at N. Dapat dilihat bahwa dengan penambahan doping nitrogen dapat meningkatkan konduktifitas tetapi untuk graphen dengan 7.75% at N memiliki nilai konduktifitas yang lebih kecil dibanding dengan yang lainnya, hal ini menurut Zhang (2009) dikarenakan keheteroatoman yang besar, jumlah atom nitrogen pada graphen dapat mengurangi efisiensi transpor elektronnya yang mengakibatkan nilai konduktifitas listrik menurun. Dengan demikian, kandungan nitrogen yang berlebihan dapat mengurangi kapasitansi spesifik yang akan dijelaskan pada subab berikutnya.



**Tabel 4. 9** Hasil perhitungan uji FPP

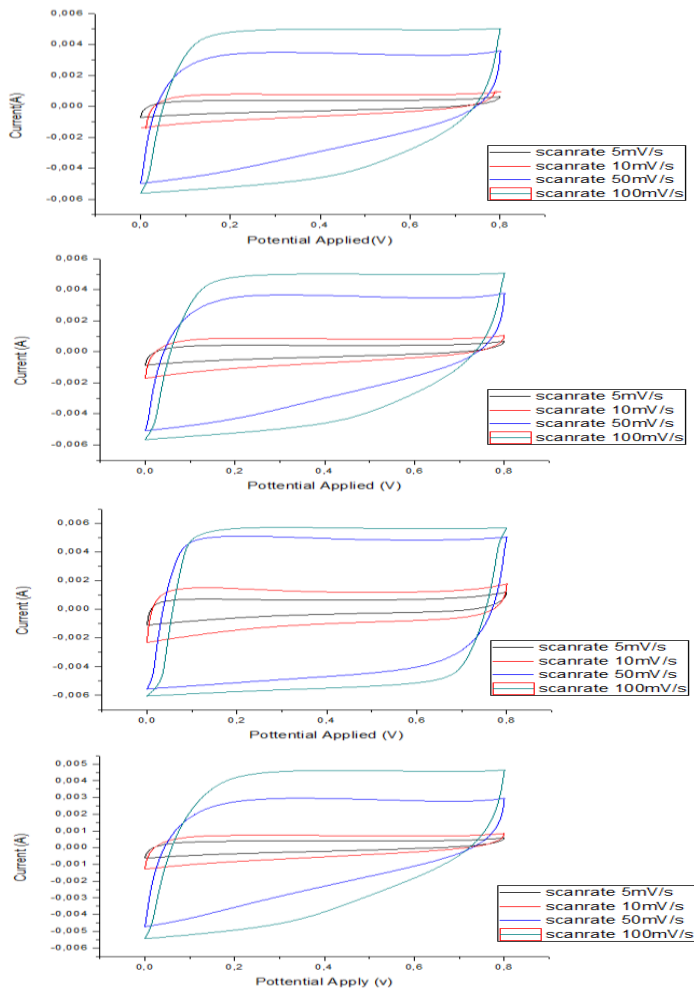
Sampel	Tebal (cm)	Hambatan ( $\Omega$ )	Resistivitas ( $\Omega$ cm)	Konduktivitas Listrik (S/cm)
<i>Graphene</i>	0.015	$4.3 \times 10^3$	294.18	0.0034
N- <i>Graphene</i> 3.19%	0.015	$4.1 \times 10^3$	256.41	0.0039
N- <i>Graphene</i> 5.2%	0.015	$4.12 \times 10^3$	243.90	0.0041
N- <i>Graphene</i> 7.75%	0.015	$3.94.4 \times 10^3$	312.50	0.0035



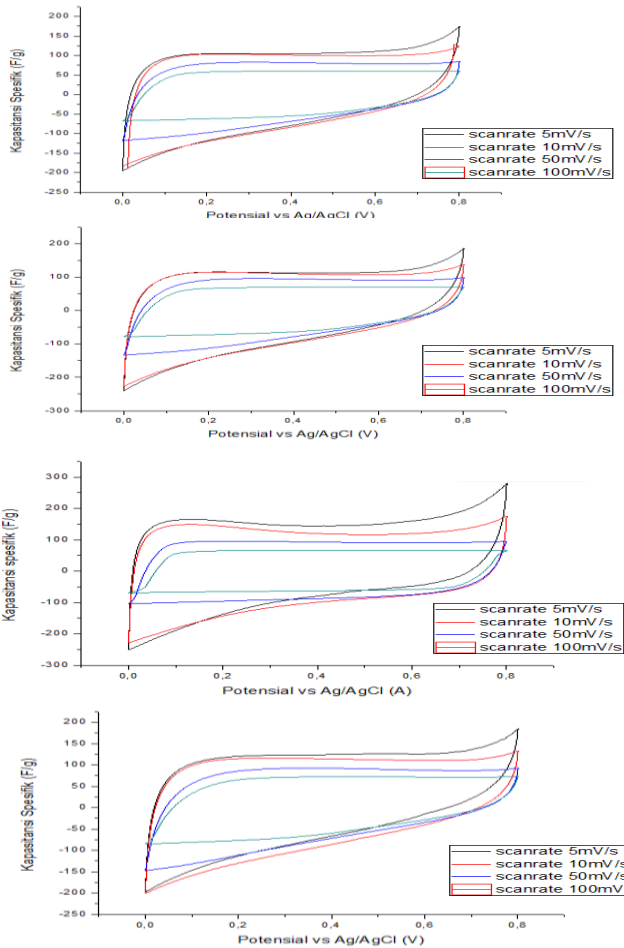
**Gambar 4.12** Perbandingan Konduktivitas listrik terhadap %at N pada *graphene*



#### 4.5 Pengujian Cyclic Voltametry



**Gambar 4.13** Perbandingan hasil uji CV grafik I vs E sampel elektroda Ni-G , Ni-G dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml, 0.3 ml dan 1 ml



**Gambar 4.14** Perbandingan hasil uji CV grafik F/g vs E sampel elektroda Ni-G , Ni-G dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml, 0.3 ml dan 1 ml.





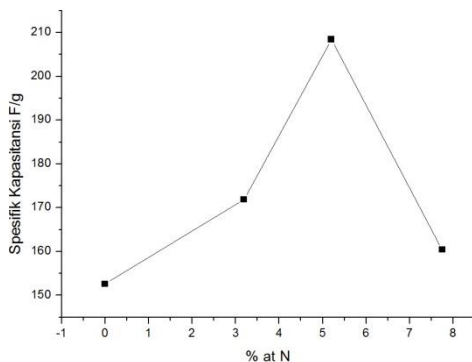
Pengujian CV dilakukan pada sampel *Ni-graphene*, *Ni-graphene* dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml, 0.3 ml dan 1 ml. Alat yang digunakan dalam pengujian CV yaitu AUTOLAB PG STAT 302 METHROM dengan reference electrode Ag/AgCl dan counter electrode Pt 99.999%. Tujuan dari pengujian ini yaitu untuk mengetahui nilai kapasitansi dari *graphene* dengan media current electron nickel foam. Hasil pengujian CV untuk sampel *Ni-graphene*, *Ni-graphene* dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml, 0.3 ml dan 1 ml. pada kurva I vs E dan C vs E ditunjukkan oleh **Gambar 4.13** dan **Gambar 4.14**.

Penggunaan elektrolit netral dari  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  pada potensial kerja 0-0.8 V tidak menghasilkan gundukan (hump) seperti yang terlihat pada **Gambar 4.13**. Adapun gundukan (hump) merupakan indikator terjadinya reaksi redoks atau efek pseudocapacitance. Adapun yang terjadi dalam pengujian yaitu pembentukan double capacitor. karena diagram CV yang terbentuk menyerupai persegi panjang.

Pada **Gambar 4.13** menunjukkan bentuk cycle simetris dan membentuk karakteristik double capacitor. Elektroda *Ni-graphene* memiliki kurva dengan bentuk miring ke atas dengan nilai kapasitansi nya sebesar 152.60 F/g pada scan rate 5mV/s, 148.42 F/g untuk scan rate 10 mV/s, 112.03 F/g untuk scan rate 50mV/s dan 82 F/g untuk scan rate 100 mV/s Nilai kapasitansi didapat dari perhitungan pada persamaan 3.3. Elektroda Ni-G *Ni-graphene* dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml memiliki kurva dengan bentuk lebih lebar dibandingkan *Ni-graphene* dan luas area lebih besar. Adapun nilai kapasitansi nya sebesar 171.87 F/g pada scan rate 5 mV/s, 165.73 F/g untuk scan rate 10 mV/s, 129.90 F/g untuk scan rate 50 mV/s dan 94.82 untuk scan rate 100 mV/s. Elektroda Ni-G dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.3 ml memiliki kurva dengan bentuk paling rectangular dengan luas area kurva yang paling besar. Nilai kapasitansi dari elektroda tersebut yaitu 208.47 F/g pada scan rate 5 mV/s, 205.60 F/g untuk scan rate 10 mV/s, 136.47 F/g untuk scan rate 50 mV/s dan 96.41 F/g untuk scan rate 100 mV/s. Sedangkan untuk elektroda Ni-



*graphene* dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  1 ml memiliki kurva dengan bentuk yang hampir sama dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml. Adapun nilai kapasitansinya sebesar 160.43 F/g pada scan rate 5 mV/s, 168.51 F/g untuk scan rate 10 mV/s, 125 F/g untuk scan rate 50 mV/s dan 94.21 untuk scan rate 100 mV/s. Dari **tabel 4.10** menunjukkan bahwa nilai kapasitansi spesifik elektroda nickel foam-N *Graphen* dengan variasi didoping nitrogen mengalami peningkatan nilai kapasitansi hampir di semua scan rate dibanding nilai kapasitansi spesifik *Graphene* tanpa didoping nitrogen.



**Gambar 4.15** Perbandingan jumlah doping atom nitrogen terhadap nilai kapasitansi spesifik

Adapun nilai kapasitansi yang dihasilkan dari sampel elektroda nickel foam tersebut dipengaruhi oleh doping nitrogen terhadap *graphene*. Nilai kapasitansi paling besar terdapat pada *graphene* dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.3 ml sebesar 208.47 F/g (scan rate 5 mV/s). Jumlah atom yang terdoping yaitu sebesar 5%. Dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  sebesar 1 ml menghasilkan nilai kapasitansi sebesar 160.437 F/g. Adapun atom nitrogen yang terdoping yaitu sebesar 7.75%. Sedangkan dengan penambahan



$\text{NH}_4\text{OH}$  0.1 ml menghasilkan 171.87 F/g. atom nitrogen yang terdoping sebesar 3.12%. *Graphene* dengan doping nitrogen memiliki kapasitansi yang lebih besar menurut Gong (2015) hal ini dikarenakan doping nitrogen menyebabkan mikro porous pada *graphene* meningkatkan *wettability* pada elektroda/elektrolit. Menurut Jeong (2015) dengan doping nitrogen pada *graphen* dapat meningkatkan binding energy, yang menyebabkan banyak pergerakan ion pada luas permukaan elektroda dan menunjukkan kapasitansi yang lebih tinggi. Tetapi pada penambahan doping nitrogen sebesar 7.75% kapasitansi spesifiknya menurun hal ini dapat disebabkan oleh konduktifitas listriknya yang menurun berdasarkan **gambar 4.15**. menurut Zang (2009) dengan penambahan nitrogen pada *graphen* dapat meningkatkan konduktifitas dimana mempercepat mobilitas elektron pada permukaan elektroda tetapi apabila keheteroatomnya besar jumlah atom nitrogen pada *graphen* dapat mengurangi efisiensi transpor elektronnya yang mengakibatkan nilai konduktifitas listrik menurun. Berdasarkan penelitian Wu (2015) penambahan atom nitrogen yang terlalu banyak dapat membuka band gap yang akan menurunkan sifat elektriknya.

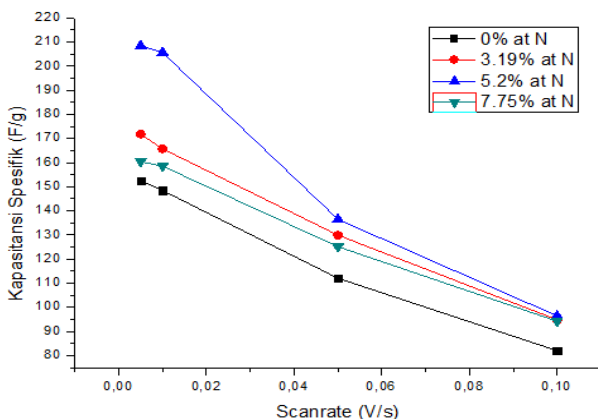
**Tabel 4.10** Perbandingan jumlah doping atom nitrogen terhadap nilai kapasitansi spesifik (scan rate 5 mV/s)

No	At %N	Kapasitansi Spesifik (F/g)
1	0	152.60
2	3.19	171.87
3	5.2	208.47
4	7.75	160.43

Pada **Gambar 4.11** menunjukkan bahwa scan rate semakin tinggi maka nilai kapasitansinya menurun. Hal ini terjadi karena scan rate mempengaruhi laju aliran ion-ion dari elektrolit menuju ke dalam elektroda *Ni-graphene*. Dengan scan rate yang



tinggi maka laju aliran tegangan menjadi cepat, akibatnya waktu yang lebih singkat bagi ion-ion elektrolit untuk berdifusi ke dalam *Ni-graphene* sehingga membentuk double layer sedikit. Sedangkan pada scan rate yang rendah, laju aliran tegangan menjadi lambat, akibatnya waktu bagi ion-ion elektrolit untuk berdifusi ke dalam *Ni-graphene* lebih lama dan membentuk double layer lebih banyak (Conway 1995). Adapun dalam pengujian ini menggunakan potensial kerja 0-0,8 V atau maksimum kerjanya 800 mV/s. Bila dianalisa berdasarkan perhitungan, maka dengan scan rate 100 mV/s maka waktu difusi ion-ion elektrolit ke dalam *Ni-graphene* hanya 16 sekon. Sedangkan dengan scan rate 5 mV/s, waktu difusi ion-ion elektrolit tersebut sebesar 320 sekon lebih besar dari penggunaan dengan scan rate 100 mV/s. Hal ini menunjukkan bahwa nilai kapasitansi *Ni-graphene* dipengaruhi oleh waktu difusi ion-ion elektrolit. Berikut Tabel hasil perhitungan nilai kapasitansi *Ni-graphene* dengan variasi doping atom nitrogen dan scan rate pada Tabel 4.15



**Gambar 4.16** Grafik Kapasitansi spesifik terhadap scan rate dan Jumlah Doping Nitrogen



**Tabel 4.11** Perbandingan hasil kapasitansi spesifik terhadap scan rate dan jumlah doping atom nitrogen

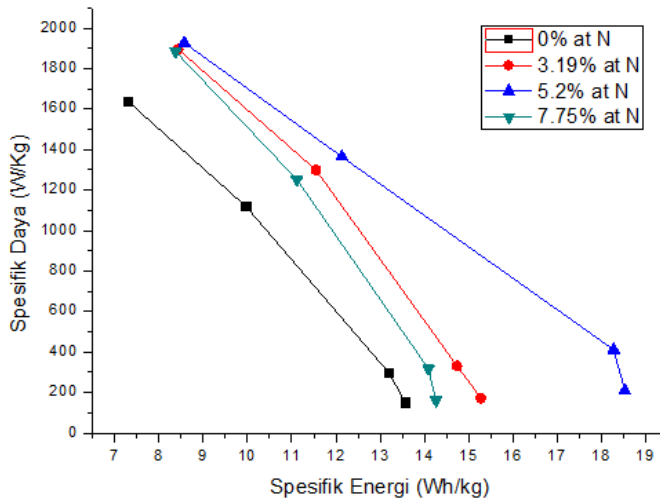
Sampel	At %N	Scan Rate (V/s)	Kapasitansi Spesifik (F/g)
<b>1</b>	0	0.005	152,59
		0.01	148,42
		0.05	112,03
		0.1	82,00
<b>2</b>	3.19	0.005	171,87
		0.01	165,73
		0.05	129,90
		0.1	94,82
<b>3</b>	5.2	0.005	208,47
		0.01	205,62
		0.05	136,47
		0.1	96,41
<b>4</b>	7.75	0.005	160,43
		0.01	158,51
		0.05	125,09
		0.1	94,21

Nilai kapasitansi hasil dari pengujian CV juga dapat digunakan untuk menentukan nilai energi spesifik dan daya spesifik dengan menggunakan persamaan 3.4 dan 3.5 Hasil Tabel perhitungan spesifik energi dan spesifik daya ditunjukkan oleh **Tabel 4.11** dan **Gambar 4.16**. Adapun nilai spesifik energi dan spesifik daya yang paling besar pada scan rate 100 mV/s dan menurun dengan turunnya nilai scan rate.



**Tabel 4.12** Perbandingan hasil Energi spesifik dan daya spesifik terhadap scan rate dan Jumlah Doping Nitrogen

<b>Sampel</b>	<b>%at N</b>	<b>Scan Rate (V/s)</b>	<b>Spesifik Energi (Wh/kg)</b>	<b>Spesifik Daya (W/kg)</b>
<b>1</b>	<b>0</b>	0.005	13.56	152.60
		0.01	13.19	296.85
		0.05	9.95	1119.86
		0.1	7.28	1639.41
<b>2</b>	<b>3.19</b>	0.005	15.27	171.87
		0.01	14.73	331.46
		0.05	11.54	1298.51
		0.1	8.42	1895.81
<b>3</b>	<b>5.2</b>	0.005	18.53	208.47
		0.01	18.27	411.25
		0.05	12.13	1364.23
		0.1	8.57	1927.45
<b>4</b>	<b>7.75</b>	0.005	14.26	160.43
		0.01	14.09	317.03
		0.05	11.11	1250.43
		0.1	8.37	1883.62



**Gambar 4.17** Grafik perbandingan nilai spesifik daya dan spesifik energi

Pada **Tabel 4.11** menunjukkan tren dari pengaruh jumlah atom nitrogen terhadap nilai kapasitansi spesifik pada elektroda *Ni-graphene*. Nilai kapasitansi spesifik tertinggi diperoleh pada doping nitrogen 5.2%at kemudian menurun pada doping nitrogen 3.19%at dan doping nitrogen 7.75%at. Penambahan doping nitrogen dapat meningkatkan spesifik kapasitansi seperti pada **tabel 4.11** tetapi pada penambahan nitrogen 7.75 % spesifik kapasitansinya turun hal ini dapat disebabkan oleh reduksi dari konduktifitas elektrik yang sudah dijelaskan sebelumnya. Saat atom nitrogen yang memiliki elektron valensi 5 didopingkan ke atom C yang memiliki elektron valensi 4 akan terjadi aliran elektron dalam sistem akibat adanya elektron yang terdelokalisir. Aliran elektron akibat doping akan mempengaruhi struktur yang dapat dilihat dari analisa pengujian XRD semakin bertambahnya



---

atom nitrogen dalam graphene kristal sizenya akan semakin menurun dan kapasitansi spesifik yang dapat dilihat pada analisa pengujian CV. Sehingga menurut Gong (2015) penambahan doping nitrogen berperan penting dalam menentukan sifat kapasitif dari N-graphene. Dari hasil perhitungan daya spesifik dan energy spesifik pada **Tabel 4.12** nampak bahwa doping nitrogen pada graphene memenuhi karakteristik sebagai superkapasitor karena daya spesifik (W/Kg) berada pada rentang  $10^1$  hingga  $10^6$  sedangkan energy spesifik berada pada rentang  $10^1$  hingga 20





## **BAB V**

### **KESIMPULAN DAN SARAN**

#### **5.1 Kesimpulan**

Berdasarkan hasil pengujian dan analisis data yang telah dilakukan dari graphene dan N-graphene dengan doping nitrogen 3.19 at.%, 5.2% dan 7.75% maka dapat ditarik kesimpulan sebagai berikut:

1. Penambahan komposisi nitrogen dari  $\text{NH}_4\text{OH}$  menunjukkan adanya perbedaan struktur terhadap graphene yang didoping dan tidak didoping yaitu pada kristal size pada pengujian XRD, dengan adanya doping maka kristalin size menurun.
2. Adanya penambahan doping hidrogen berpengaruh terhadap kapasitansi spesifik graphene dan penambahan nitrogen 5.2%at merupakan yang paling optimal, karena didapatkan nilai kapasitansi yang paling tinggi sebesar 208.47 F/g.

#### **5.2 Saran**

Beberapa saran yang dapat diperhatikan untuk penelitian selanjutnya adalah:

1. Melakukan pengujian lain untuk menunjang data kapasitansi spesifik pada graphene seperti BET (Bruner Emmet Teller)
2. Dapat dilakukan penelitian dengan variasi atau parameter lain.



*(halaman ini sengaja dikosongkan)*

## DAFTAR PUSTAKA

Basu, S., P. Bhattacharyya. 2012. "Recent developments on graphene and graphene oxide based solid state gas sensors". **Sensors and Actuators B** 173: 1-21.

Beidu G., Fang I., Zhang B. 2011. "Graphene Doping". **Review Paper Insciences J.** 1(2), 80-89

Brindan T., Vikrant S., Sonia G. 2015. "Heavily nitrogen doped, graphene supercapacitor from silk cocoon". **Electrochimica Acta** 160 (2015) 244–253

Conway, B.E. 1999. **Electrochemical Supercapacitors. Scientific Fundamentals and Technological Applications**. New York, U.S.A: Kluwer Academics/Plenum Publishers.

Choi, H. J., Jung, S. M., Seo, J. M., Chang, D. W., Dai, L., & Baek, J. B. 2012. "Graphene for energy conversion and storage in fuel cells and supercapacitors". **Nano Energy**, 1(4), 534-551.

Dreyer, D. R., Park, S., Bielawski, C. W., & Ruoff, R. S. 2010. "The chemistry of graphene oxide". **Chemical Society Reviews**, 39(1), 228-240.

Geng, D., Yang, S., Zhang, Y., Yang, J., Liu, J., Li, R., & Knights, S. 2011. "Nitrogen doping effects on the structure of graphene". **Applied Surface Science**, 257(21), 9193-9198.

Gong, Y., Li, D., Fu, Q., & Pan, C. 2015. "Influence of graphene microstructures on electrochemical performance for supercapacitors". **Progress in Natural Science: Materials International**, 25(5), 379-385.

Ha, J. H., Muralidharan, P., & Kim, D. K. 2009. "Hydrothermal synthesis and characterization of self-assembled h-WO<sub>3</sub> nanowires/nanorods using EDTA salts". **Journal of Alloys and Compounds**, 475(1), 446-451.

Hye, M., Jayabal, S., Lim, H. N., Lee, H. W., & Huang, N. M. 2017. "Synthesis of nitrogen-doped reduced graphene oxide-multiwalled carbon nanotube composite on nickel foam as

electrode for high-performance supercapacitor". **Ceramics International**, 43(1), 20-27.

Khali, K., & Murali, R. (2013). "Single step, complementary doping of graphene". **Applied Physics Letters**, 96(6), 063104.

Kim, Y., Zhang, X., Zhang, H., Sun, X., Zhang, D., & Ma, Y. 2012. "High-performance supercapacitors based on a graphene-activated carbon composite prepared by chemical activation". **RSC Advances**, 2(20), 7747-7753.

KEMET Co. Ltd. 2013. **Introduction To Capacitor Technologies, what is capacitor**. Simpsonville: South Carolina, US.

Murata America Co. Ltd. 2013. **High Performance Electrical Double Layer Capacitor**. Smyrna: Murata Electronics

Novoselov, K.S., A.K., Geim, S.V., Morozov, D., Jiang, M.I., Katsnelson, I.V., Grigorieva, S.V., Dubonos, dan A.A., Firsov. 2005. "Two-dimensional gas of massless Dirac fermions in graphene". **Nature** 438: 197–200.

Nurdiansyah, H. dan Susanti, D. 2014. "Pengaruh Variasi Temperatur Hidrotermal dan Waktu Ultrasonikasi Terhadap Nilai Kapasitansi Elektroda Electric Double Layer Capacitor (EDLC) dari material grafena". **Thesis S2 Teknik Material dan Metalurgi ITS**.

Panchakarla, L. S. 2009. "Synthesis, Structure and Properties of Boron and Nitrogen Doped Graphene". **Adv. Materials** 21 (46) , 4726-4730.

Singh, V., Joung, D., Zhai, L., Das, S., Khondaker, S. I., & Seal, S. 2011. "Graphene based materials: past, present and future". **Progress in materials science**, 56(8), 1178-1271.

Stoller, D.M., Park, S., Zhu, Y., An, J., Ruoff, R.S., 2009. "Graphene-Based Ultracapacitors". **American Chemical Society. 1155 Sixteenth Street N.W., Washington, DC 20036**.

Suresh, B. S., Elavarasan, A., & Sathish, M. 2016. "High performance supercapacitor using N-doped graphene prepared via

supercritical fluid processing with an oxime nitrogen source". **Electrochimica Acta**, 200, 37-45.

Tien, H. N., Lee, T. K., Kong, B. S., Chung, J. S., Kim, E. J., & Hur, S. H. 2012. "Enhanced solvothermal reduction of graphene oxide in a mixed solution of sulfuric acid and organic solvent". **Chemical engineering journal**, 211, 97-103.

Ting, L. T., Lai, W. H., Lü, Q. F., & Yu, Y. 2015. "Porous nitrogen-doped graphene/carbon nanotubes composite with an enhanced supercapacitor performance". **Electrochimica Acta**, 178, 517-524.

Warner, M., Botello-Méndez, A. R., Campos-Delgado, J., López-Urías, F., Vega-Cantú, Y. I., Rodríguez-Macías, F. J., ... & Terrones, H. 2006. "Graphene and graphite nanoribbons: Morphology, properties, synthesis, defects and applications". **Nano Today**, 5(4), 351-372.

Wu, Z., Liu, X., & Yin, Y. 2017. "Highly nitrogen-doped graphene anchored with Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanoparticles as supercapacitor electrode with enhanced electrochemical performance". **Synthetic Metals**, 223, 145-152.

Yu, F., Lo, S. T., Lin, J. C., Zhang, W., Lu, J. Y., Liu, F. H., & Li, L. J. 2013. "Nitrogen-doped graphene sheets grown by chemical vapor deposition: Synthesis and influence of nitrogen impurities on carrier transport". **ACS nano**, 7(8), 6522-6532.

Zhang, X. W., Yang, G. W. 2009. "Novel Band Structures and Transport Properties from Graphene Nanoribbons with Armchair Edges". **J. Phys. Chem. C** 113, 4662-4668.

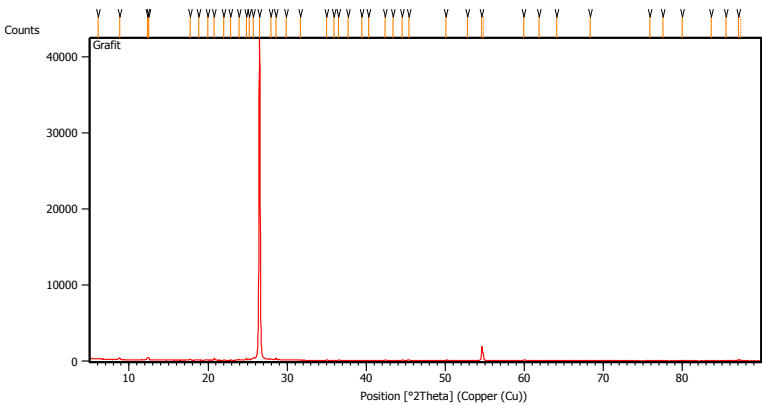
Zhou, Y., Bao, Q., Tang, L. A. L., Zhong, Y., & Loh, K. P. 2009. "Hydrothermal dehydration for the green reduction of exfoliated graphene oxide to graphene and demonstration of tunable optical limiting properties". **Chemistry of Materials**, 21(13), 2950-2956.

Zhu, Y., Hu, H., Li, W., & Zhang, X. 2007. "Resorcinol-formaldehyde based porous carbon as an electrode material for supercapacitors". **Carbon**, 45(1), 160-165.

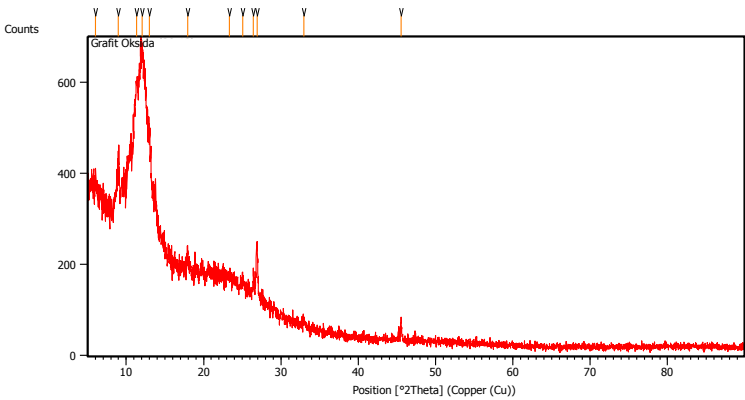
*(halaman ini sengaja dikosongkan)*

LAMPIRAN

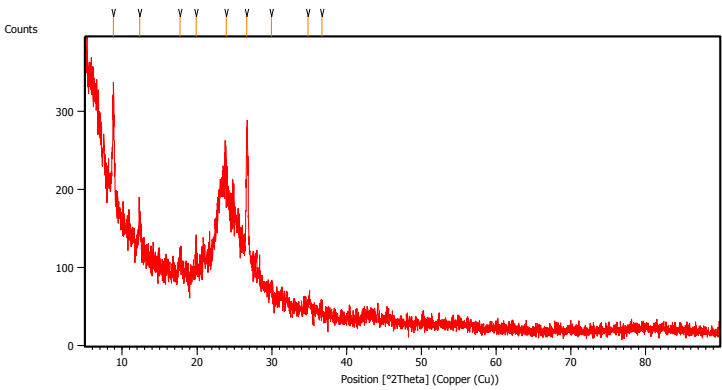
XRD GRAFIT



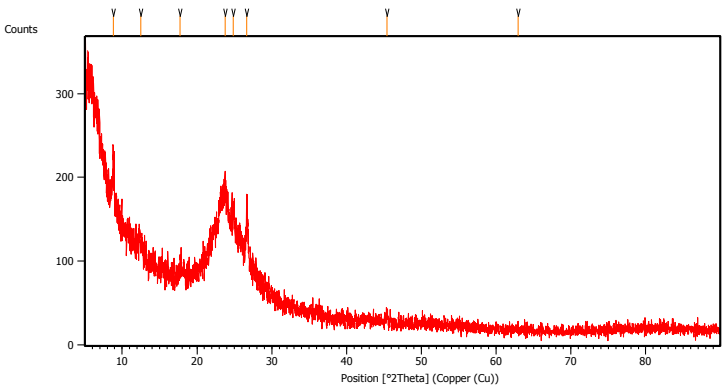
XRD GRAFIT OKSIDA



**XRD GRAPHENE**

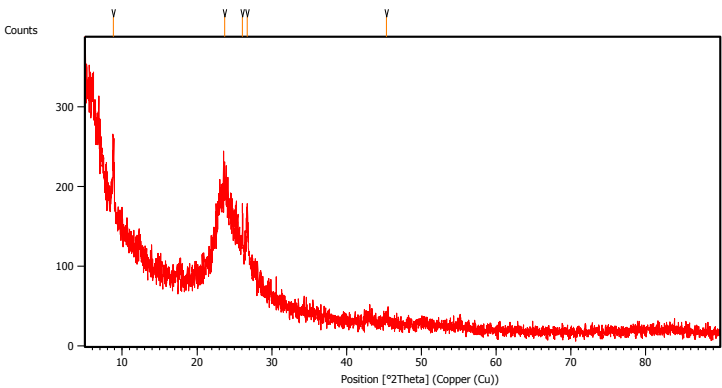


**XRD N-GRAPHEN 3.19%AT N**

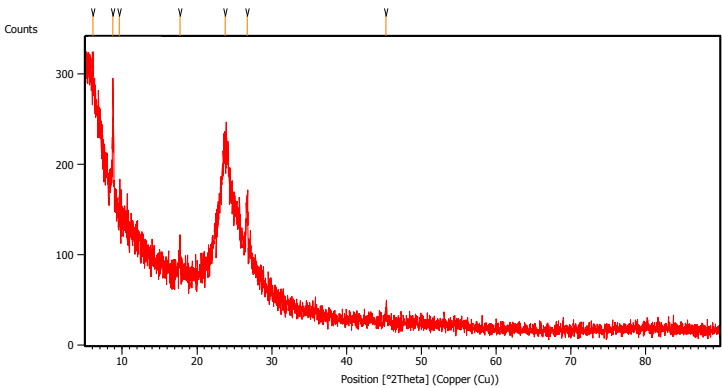




**XRD N-GRAPHEN 5.2%AT N**



**XRD N-GRAPHEN 7.75%AT N**



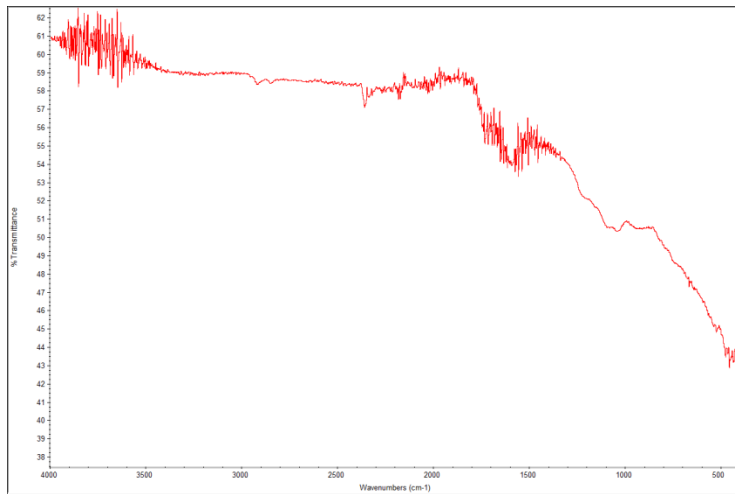
## FTIR GRAPHENE



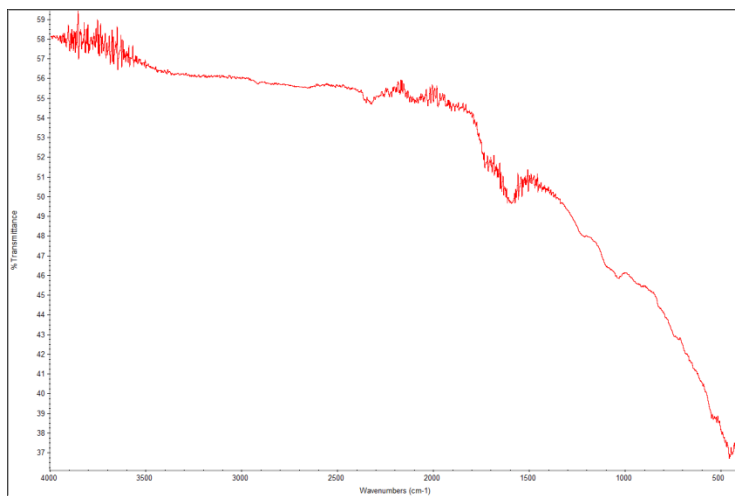
## FTIR NGRAPHENE 3.7%at N



## FTIR NGRAPHENE 5.12%at N



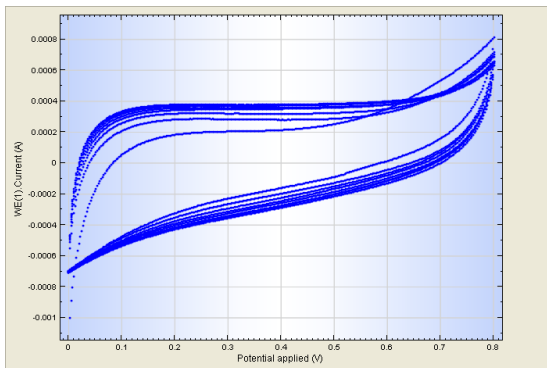
## FTIR NGRAPHENE 7.75 %at N



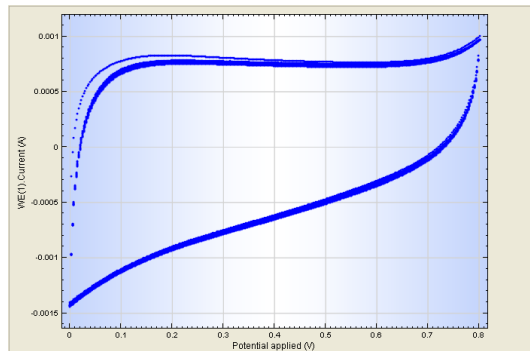
## CYCLIC VOLTAMMETRY

### Hasil Analisa Cyclic Voltametry – Potensiostat Autolab (PGSTAT302N)

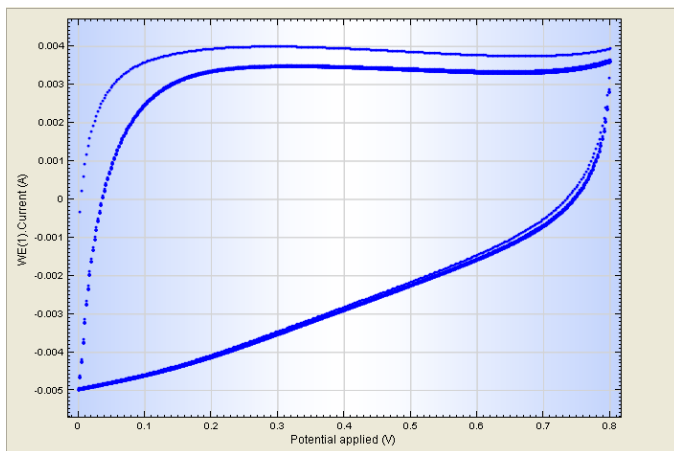
Nama Sampel : GP-03  
Larutan elektrolit :  $\text{Na}_2\text{SO}_4$   
Voltase : 0 – 0.8 V  
Scan Rate : 5 mV/s



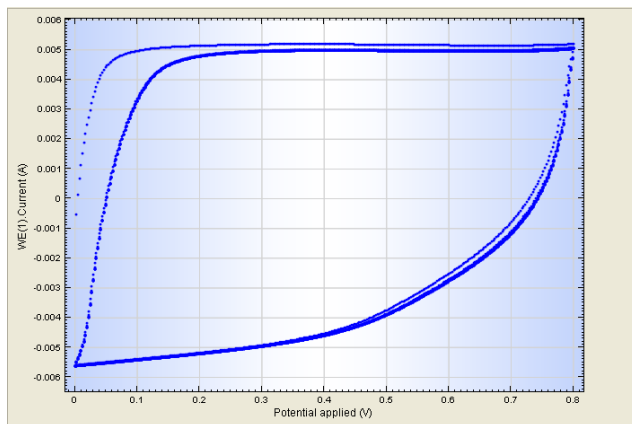
Scan Rate : 10 mV/s



Scan Rate : 50 mV/s



Scan Rate : 100 mV/s



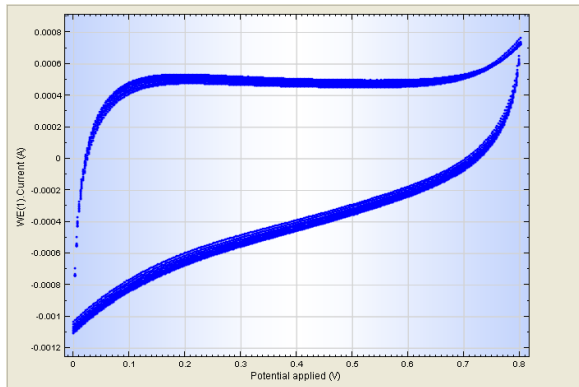
## Hasil Analisa Cyclic Voltametry – Potensiostat Autolab (PGSTAT302N)

Nama Sampel : NG 0,1-02

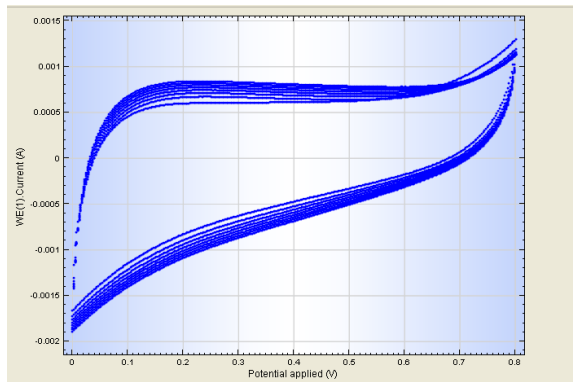
Larutan elektrolit :  $\text{Na}_2\text{SO}_4$

Voltase : 0 – 0.8 V

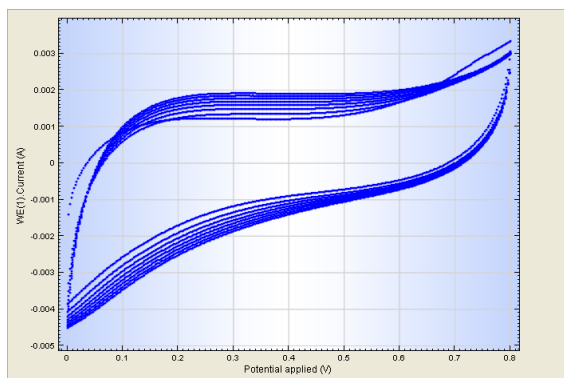
Scan Rate : 5 mV/s



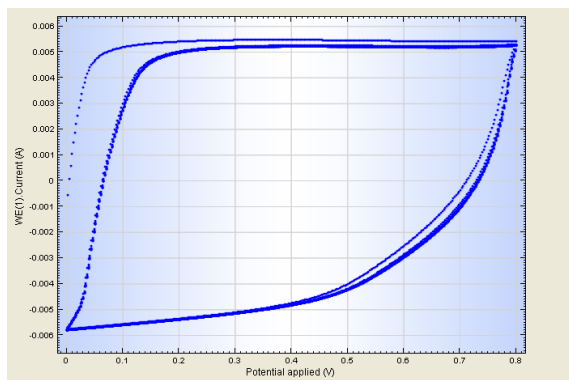
Scan Rate : 10 mV/s



Scan Rate : 50 mV/s



Scan Rate : 100 mV/s



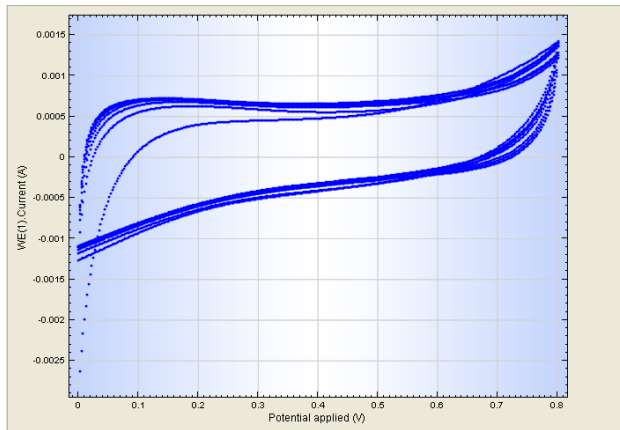
## Hasil Analisa Cyclic Voltametry – Potensiostat Autolab (PGSTAT302N)

Nama Sampel : NG 0,3-03

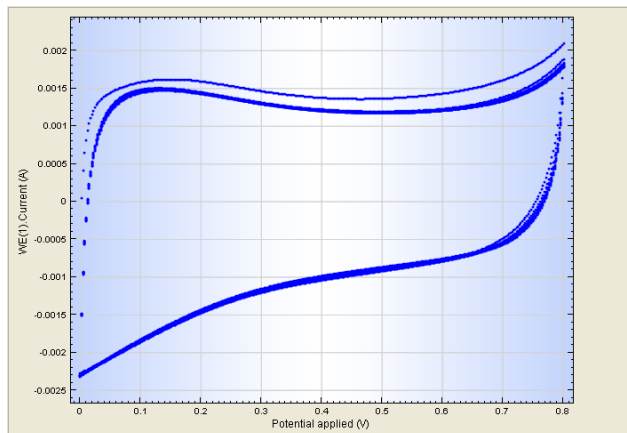
Larutan elektrolit :  $\text{Na}_2\text{SO}_4$

Voltase : 0 – 0.8 V

Scan Rate : 5 mV/s

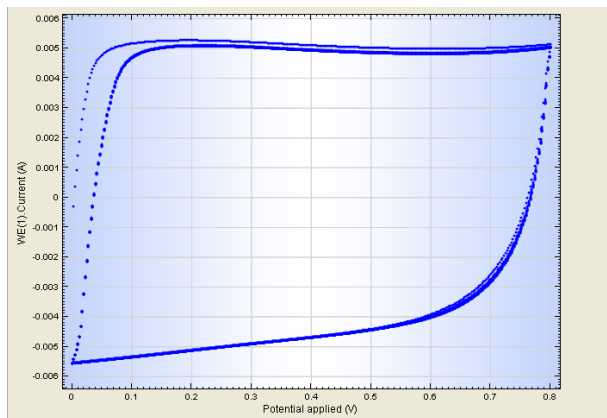


Scan Rate : 10 mV/s

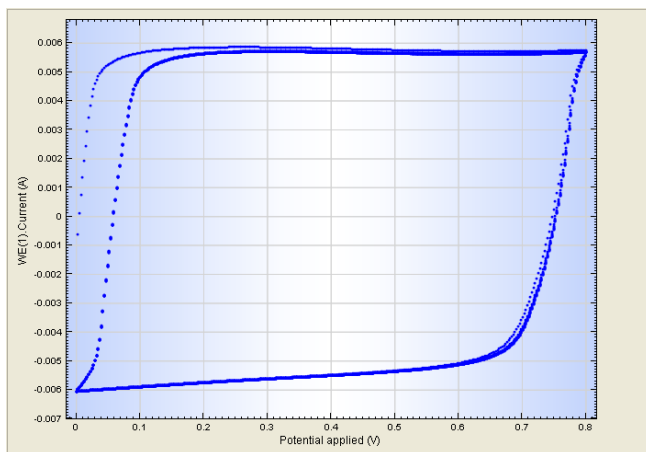




Scan Rate : 50 mV/s

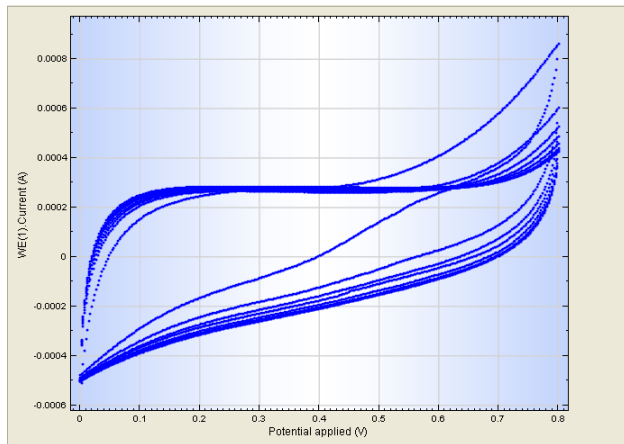


Scan Rate : 100 mV/s

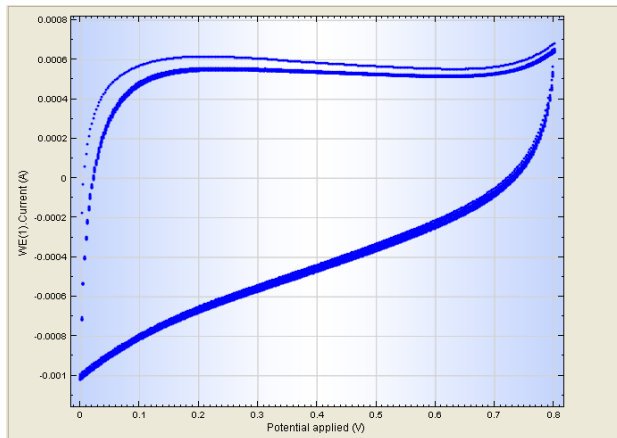


## Hasil Analisa Cyclic Voltametry – Potensiostat Autolab (PGSTAT302N)

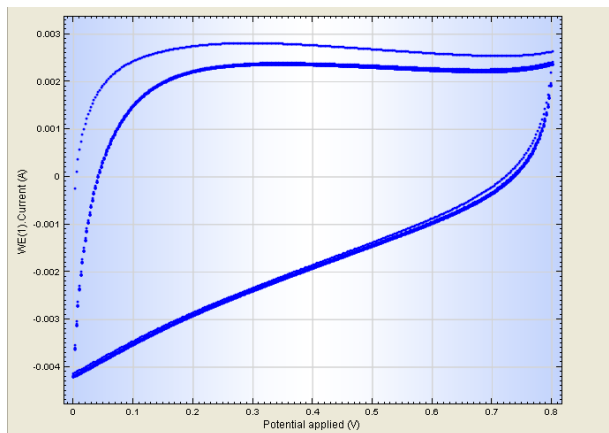
Nama Sampel : NG 1:3  
Larutan elektrolit :  $\text{Na}_2\text{SO}_4$   
Voltase : 0 – 0.8 V  
Scan Rate : 5 mV/s



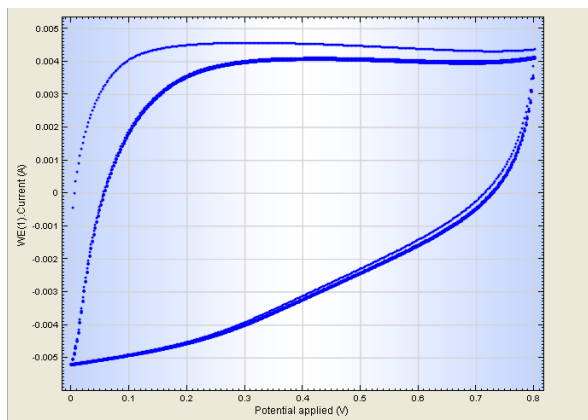
Scan Rate : 10 mV/s



Scan Rate : 50 mV/s



Scan Rate : 100 mV/s



## **BIOGRAFI PENULIS**



Diah Ayu Safitri dilahirkan di Malang pada 01 April 1995. Penulis merupakan anak kedua dari 2 bersaudara. Penulis menempuh pendidikan formal di SDN 1 Sumberoto, SMPN 1 Donomulyo, SMAN 1 Kepanjen Setelah itu melanjutkan pendidikan perguruan tingginya di Jurusan Teknik Material dan Metalurgi Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya angkatan 2013. Selama menjadi mahasiswa, penulis aktif di kegiatan akademik maupun non akademik. Dalam bidang akademik, penulis aktif menjadi, Asisten Laboratorium Fisika (2015) Sedangkan dalam bidang non akademik, penulis aktif di Himpunan Mahasiswa Teknik Material dan Metalurgi, Fakultas Teknologi Industri, ITS (HMMT, FTI-ITS) sebagai Staff Departmen Kesejahteraan Mahasiswa (2014/2015) dan sekretaris Departmen Kesejahteraan Mahasiswa (2015/2016). Saat ini penulis bertempat tinggal di Malang, dan memiliki alamat e-mail: diahsafitri76@gmail.com.